

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 11-314996

(43)Date of publication of application : 16.11.1999

(51)Int.Cl.

C30B 29/06  
C30B 29/06  
C30B 29/06  
C01B 33/023  
C30B 13/28  
C30B 13/32

(21)Application number : 10-126031

(71)Applicant : DIGITAL WAVE:KK

(22)Date of filing : 08.05.1998

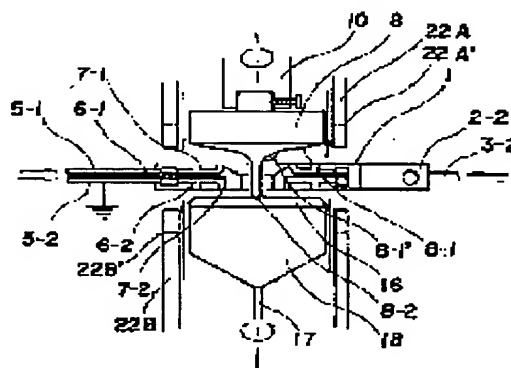
(72)Inventor : MARUYAMA MITSUHIRO  
MARUYAMA YASUHIRO

### (54) CRYSTAL PRODUCING METHOD AND EQUIPMENT THEREFOR

(57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide the method and equipment for producing a silicon single crystal or silicon polycrystal by using a vapor phase component raw material.

**SOLUTION:** In this method, a high frequency coil 1 to which gas blowout ports 7 are connected oppositely to an exothermic solid 8 or a melt 16 and metallic conductor barriers 22 each having plural insulating longitudinal grooves are arranged, the exothermic solid 8 or the melt 16 is subjected to induction heating with the high frequency coil 1, a gaseous component raw material is supplied to the surface of the exothermic solid 8 or melt 16 from the gas blowout ports 7, and melt drops 8-1' are generated in the lower part of the exothermic solid 8 at a temp. higher than the melting point of the crystallized raw material to allow the melt drops to fall and flow out, or the melt is generated on the lower melt zone 16, thereby growing the single crystal on a solid single crystal 18 supporting the melt zone 16 by a floating zone melting method.



### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-314996

(43) 公開日 平成11年(1999)11月16日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

C 3 0 B 29/06

識別記号

5 0 1

5 0 2

C 0 1 B 33/023

F I

C 3 0 B 29/06

D

5 0 1 A

5 0 2 A

C 0 1 B 33/023

審査請求 未請求 請求項の数31 O L (全 44 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平10-126031

(22) 出願日 平成10年(1998)5月8日

(71) 出願人 595000933

有限会社デジタル・ウェーブ

東京都杉並区和田1丁目44番29号

(72) 発明者 丸山 光弘

東京都杉並区和田1丁目44番29号

(72) 発明者 丸山 康弘

東京都杉並区和田1丁目44番29号

(74) 代理人 弁理士 武 顕次郎

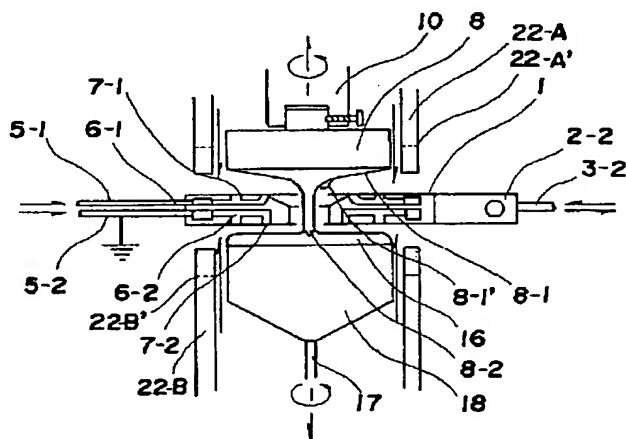
(54) 【発明の名称】 結晶の製造方法及び製造装置

(57) 【要約】

【課題】 気相成分原料を用いたシリコン単結晶及び多結晶の製造方法及び製造装置。

【解決手段】 発熱固体8あるいは熔融液16に対向して、ガス吹出し口7が連結された高周波コイル1あるいは複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体障壁22を配置し、前記発熱固体8あるいは熔融液16に対し前記高周波コイル1により誘導加熱を行い、さらに、前記発熱固体8あるいは熔融液16の表面に前記ガス吹出し口7より原料成分ガスを供給し、折出原料の熔融点以上の温度において、上部発熱固体8の下部に熔融液滴8-1'の発生を行い、これを下降流出させ、あるいは、下部熔融液帯16上に熔融液の発生を行い、熔融液帯を支持する固体単結晶18の上に浮遊帯法により単結晶を成長させる。

【図28】



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 発熱固体と、該発熱固体の下部表面に対向して配置された高周波コイルと、該コイル面に設けられた少なくとも1個のガス吹き出し口とを備え、前記発熱固体を前記高周波コイルにより折出成分元素あるいは化合物の融点以上の温度に誘導過熱し、前記少なくとも1個のガス吹き出し口から前記発熱固体の下部表面に少なくとも1種類の前記成分元素を含む原料ガスを吹き付け、前記発熱固体の下部表面で前記成分元素あるいは化合物の折出と溶解を行わせ、折出した溶液を前記発熱固体の低部より滴下あるいは下降流出させて結晶の製造を行うことを特徴とする結晶の製造方法。

【請求項2】 前記滴下する溶液を冷却固化し、あるいは、滴下する溶液を回転固体と衝突分散させて冷却固化することにより、粒状結晶を製造することを特徴とする請求項1記載の結晶の製造方法。

【請求項3】 前記滴下する溶液をるつぽに受け、るつぽに前記溶液を供給しながら多結晶インゴットを製造することを特徴とする請求項1記載の結晶の製造方法。

【請求項4】 前記るつぽ内の溶液より引上法により種子結晶あるいは単結晶インゴットを用いて結晶成長を行わせることにより多結晶あるいは単結晶の結晶インゴットを製造することを特徴とする請求項3記載の結晶の製造方法。

【請求項5】 発熱固体と、該発熱固体の上部表面に対向して配置された高周波コイルと、該コイル面に設けられた少なくとも1個のガス吹き出し口とを備え、前記発熱固体を前記高周波コイルにより折出成分元素あるいは化合物の融点以上の温度に誘導過熱し、前記少なくとも1個のガス吹き出し口から前記発熱固体の上部表面に少なくとも1種類の前記成分元素を含む原料ガスを吹き付け、前記発熱固体の上部表面で前記成分元素あるいは化合物の折出と溶解を行わせ、浮遊帯法により、前記発熱固体上に単結晶あるいは多結晶の結晶成長を行わせることを特徴とする結晶の製造方法。

【請求項6】 上部及び下部の2個の発熱固体と、該2個の発熱固体の間に各発熱固体の表面に対向して配置される高周波コイルと、該コイルの両面のそれぞれに設けられた少なくとも1個のガス吹き出し口とを備え、前記2個の発熱固体を前記高周波コイルにより折出成分元素あるいは化合物の融点以上の温度に誘導過熱し、前記ガス吹き出し口から前記2個の発熱固体の表面に少なくとも1種類の前記成分元素を含む原料ガスを吹き付け、前記2個の発熱固体の表面で前記成分元素あるいは化合物の折出と溶解を行わせ、前記上部の発熱固体の表面に折出した溶液を前記発熱固体の低部より、前記下部の発熱固体の表面に滴下あるいは下降流出させ、浮遊帯法により、前記下部の発熱固体上に単結晶あるいは多結晶の結晶成長を行わせることを特徴とする結晶の製造方

法。

【請求項7】 発熱固体と、該発熱固体の下部表面に対向して配置された高周波コイルと、該コイル面に設けられた少なくとも1個のガス吹き出し口とを備え、前記発熱固体を前記高周波コイルにより折出成分元素あるいは化合物の融点以上の温度に誘導過熱し、前記少なくとも1個のガス吹き出し口から前記発熱固体の下部表面に少なくとも1種類の前記成分元素を含む原料ガスを吹き付け、前記発熱固体の下部表面で前記成分元素あるいは化合物の折出と溶解を行わせ、折出した溶液を前記発熱固体の低部より滴下あるいは下降流出させて結晶の製造を行うことを特徴とする結晶の製造装置。

【請求項8】 前記発熱固体の低部より滴下あるいは下降流出する溶液の滴下位置に回転固体を備え、溶液を回転固体に衝突分散させて冷却固化することにより、粒状結晶を製造することを特徴とする請求項7記載の結晶の製造装置。

【請求項9】 前記発熱固体は、その下部中央付近に前記高周波コイル中央部に設けられた孔を貫通する突起部を有し、前記突起部先端に接しあるいはその極く近傍に配置された種子結晶を用い、前記突起部先端に下降流出する溶液を保持しながら単結晶成長を行うことを特徴とする請求項7記載の結晶の製造装置。

【請求項10】 前記発熱固体の低部より滴下あるいは下降流出する溶液の滴下位置にるつぽを備え、るつぽに前記溶液を供給しながら多結晶インゴットを製造することを特徴とする請求項7記載の結晶の製造装置。

【請求項11】 前記るつぽ内の溶液より引上法により種子結晶あるいは単結晶インゴットを用いて結晶成長を行わせることにより多結晶あるいは単結晶の結晶インゴットを製造することを特徴とする請求項10記載の結晶の製造装置。

【請求項12】 前記発熱固体の低部より滴下あるいは下降流出する溶液の滴下位置に、底部に少なくとも1個の孔を有する障壁円筒を備え、該障壁円筒の前記底部の孔に接しあるいはその極く近傍に配置された種子結晶を用い、前記孔から流出する溶液を保持しながら単結晶成長を行うことを特徴とする請求項7記載の結晶の製造装置。

【請求項13】 発熱固体と、該発熱固体の上部表面に対向して配置された高周波コイルと、該コイル面に設けられた少なくとも1個のガス吹き出し口とを備え、前記発熱固体を前記高周波コイルにより折出成分元素あるいは化合物の融点以上の温度に誘導過熱し、前記少なくとも1個のガス吹き出し口から前記発熱固体の上部表面に少なくとも1種類の前記成分元素を含む原料ガスを吹き付け、前記発熱固体の上部表面で前記成分元素あるいは化合物の折出と溶解を行わせて、前記発熱固体の上部表面に溶解帯を形成し、浮遊帯法により前記発熱固体上に単結晶あるいは多結晶の結晶成長を行わせることを特

徴とする結晶の製造装置。

【請求項14】 前記発熱固体上部に形成された熔融帯を取り囲んで配置された複数の絶縁縦溝を有する金属性外障壁を備え、前記熔融液帯外周を前記金属性外障壁との間に発生する電磁力によって非接触に安定保持することを特徴とする請求項13記載の結晶の製造装置。

【請求項15】 上部及び下部の2個の発熱固体と、該2個の発熱固体の間に各発熱固体の表面に対向して配置される高周波コイルと、該コイルの両面のそれぞれに設けられた少なくとも1個のガス吹き出し口とを備え、前記2個の発熱固体を前記高周波コイルにより折出成分元素あるいは化合物の融点以上の温度に誘導加熱し、前記ガス吹き出し口から前記2個の発熱固体の表面に少なくとも1種類の前記成分元素を含む原料ガスを吹き付け、前記2個の発熱固体の表面で前記成分元素あるいは化合物の折出と溶解を行わせ、前記上部の発熱固体の表面に折出した熔融液を前記発熱固体の低部より、前記下部の発熱固体の表面の熔融帯に滴下あるいは下降流出させ、浮遊帯法により、前記下部の発熱固体上に単結晶あるいは多結晶の結晶成長を行わせることを特徴とする結晶の製造装置。

【請求項16】 前記高周波コイルを上部の発熱固体を誘導加熱する第1のコイルと、下部の発熱固体を誘導加熱する第2のコイルとにより構成し、上部及び下部の発熱固体の加熱の制御をそれぞれ独立に行うことを特徴とする請求項15記載の結晶の製造方法。

【請求項17】 前記上部の発熱固体は、その下部中央付近に前記高周波コイル中央部に設けられた孔を貫通する突起部を有し、該突起部の先端が前記下部の発熱固体上の熔融液に接しており、前記上部の発熱固体に析出した熔融液を前記突起部に沿って下部の発熱固体上の熔融液に供給することを特徴とする請求項15記載の結晶の製造装置。

【請求項18】 前記下部の発熱固体上部に形成された熔融帯を取り囲んで配置された複数の絶縁縦溝を有する金属性外障壁を備え、前記熔融液帯外周を前記金属性外障壁との間に発生する電磁力によって非接触に安定保持することを特徴とする請求項15、16または17記載の結晶の製造装置。

【請求項19】 断面構造が漏斗状あるいは曲面状を有し、その内面に沿ってガス吹き出し口が配置された高周波コイルを備え、該高周波コイルの内側に配置された原料熔融液を前記高周波コイルにより原料の融点温度以上に誘導加熱し、前記原料熔融液を前記ガス吹き出しによる浮揚力及び前記コイルとの間に発生する電磁誘導反発力による浮揚力により空中に浮揚保持し、前記原料熔融液に原料成分ガスあるいは不活性ガスを吹付けて、原料熔融液の供給を行うことにより結晶の製造を行うことを特徴とする結晶の製造方法。

【請求項20】 ほぼ筒状の形状を有し、その内面に沿

ってガス吹き出し口が配置され、複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体障壁と、該金属性導電体障壁の外周に設けられた高周波コイルとを備え、前記金属性導電体障壁の内側に配置された原料熔融液を前記高周波コイルにより原料の融点温度以上に誘導加熱し、前記原料熔融液を前記ガス吹き出しによるガス圧力及び前記金属性導電体障壁との間に発生する電磁気力による反発力により空中に非接触で浮揚保持し、前記原料熔融液に原料成分ガスあるいは不活性ガスを吹付けて、原料熔融液の供給、保持を行うことにより結晶の製造を行うことを特徴とする結晶の製造方法。

【請求項21】 前記浮揚保持されている原料熔融液に固体結晶を接続し、該固体結晶を使用して、浮揚保持されている原料熔融液から結晶成長を行うことを特徴とする請求項19または20記載の結晶の製造方法。

【請求項22】 断面構造が漏斗状あるいは曲面状を有し、その内面に沿ってガス吹き出し口が配置された高周波コイルを備え、該高周波コイルの内側に配置された原料熔融液を前記高周波コイルにより原料の融点温度以上に誘導加熱し、前記原料熔融液を前記ガス吹き出しによる浮揚力及び前記コイルとの間に発生する電磁誘導反発力による浮揚力により空中に浮揚保持し、前記原料熔融液に原料成分ガスあるいは不活性ガスを吹付けて、原料熔融液の供給を行うことにより結晶の製造を行うことを特徴とする結晶の製造装置。

【請求項23】 ほぼ筒状の形状を有し、その内面に沿ってガス吹き出し口が配置され、複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体障壁と、該金属性導電体障壁の外周に設けられた高周波コイルとを備え、前記金属性導電体障壁の内側に配置された原料熔融液を前記高周波コイルにより原料の融点温度以上に誘導加熱し、前記原料熔融液を前記ガス吹き出しによるガス圧力及び前記金属性導電体障壁との間に発生する電磁気力による反発力により空中に非接触で浮揚保持し、前記原料熔融液に原料成分ガスあるいは不活性ガスを吹付けて、原料熔融液の供給、保持を行うことにより結晶の製造を行うことを特徴とする結晶の製造装置。

【請求項24】 前記浮揚保持されている原料熔融液に固体結晶を接続し、該固体結晶を使用して、浮揚保持されている原料熔融液から結晶成長を行うことを特徴とする請求項22または23記載の結晶の製造装置。

【請求項25】 前記浮揚保持されている原料熔融液に、請求項7記載の製造装置により製造された熔融液を滴下して加えることを特徴とする請求項22、23または24記載の結晶の製造装置。

【請求項26】 前記高周波コイル面を貫通して配置された、少なくとも1個の透明固体による光導路を備え、前記光導路を通して長波長（赤外線）の光あるいは短波長（紫外線）の光を、前記発熱固体表面あるいは熔融液表面に照射することを特徴とする請求項7ないし18、

22ないし25のうちいずれか1記載の結晶の製造装置。

【請求項27】 前記高周波コイル面を貫通して配置された、少なくとも1個の透明固体による光導路を備え、前記光導路を通して前記発熱固体表面あるいは熔融液表面の温度を検出し、この検出信号により前記高周波コイルによる発熱固体の加熱を制御することを特徴とする請求項7ないし18、22ないし25のうちいずれか1記載の結晶の製造装置。

【請求項28】 前記発熱固体側面の周囲に沿って発熱固体を取り囲む第1の外筒を備え、前記発熱固体と前記外筒との間に不活性ガスを流し、原料ガスの廻り込みによる多結晶折出を防止することを特徴とする請求項7ないし18のうちいずれか1記載の結晶の製造装置。

【請求項29】 前記発熱固体を取り囲む第1の外筒の外周部に第2の外筒を備え、前記第1外筒と前記第2外筒との間から排気を行うことにより、反応生成ガスを排気することを特徴とする請求項28記載の結晶の製造方法。

【請求項30】 前記第2の外筒は、透明絶縁体あるいは覗き孔を有する金属あるいは不透明固体により構成され、絶縁体を介して前記高周波コイルあるいは前記コイルの絶縁性支持体と接続していることを特徴とする請求項29記載の結晶の製造装置。

【請求項31】 前記高周波コイルの前記発熱固体が配置されたコイル面と反対側のコイル面にカバーを備え、コイル面とカバーとの間に不活性ガスを流しあるいは排気を行うことにより、反応生成ガスの置換、排気を行うことを特徴とする請求項7ないし18のうちいずれか1記載の結晶の製造装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、シリコン等の半導体結晶の製造方法及び製造装置に係り、特に、大口径、高品質の単結晶の製造を、原料ガス（気相）より直接単結晶（固体）成長まで連続して1つの工程により行うことを可能にし、生産性の向上、トータルコストダウン、装置の小形化、省エネルギー化を実現すると共に、多くの応用を可能とするシリコン等の半導体結晶を製造する結晶の製造方法及び製造装置に関する。

【0002】

【従来の技術】近年、半導体ウエハ（特に、シリコンウエハ基板）は、太陽電池、個別半導体素子（トランジスタ、ダイオード等）、IC（Integrated Circuit）、超LSI（Ultra Large Scale Integrated Circuit）用として盛んに使用されている。

【0003】シリコンウエハ基板の原料となるシリコン単結晶は、通常、多くの製造工程を経て作成されている。すなわち、シリコン単結晶は、①成分元素を含む高純度ガスの熱分解あるいは還元反応による多結晶インゴ

ットの製造工程、②多結晶インゴットの切断、破碎、成形加工、エッチング、乾燥等の工程、③引上法（CZ法）、浮遊帯熔融法（FZ法）あるいは電磁铸造法により熔融液からの結晶製造工程により製造されるのが一般的である。

【0004】そして、素子の高密度高集積化、基板結晶の大口径化（12インチφ～16インチφ）に伴い、基板結晶品質の向上と高精度化への要求は厳しくなり、また、設備の大形化に伴う製造設備、石英るつぼ、カーボンるつぼ等の資材、電力、水等のエネルギー、消費材の増大を抑え、さらに、製造工程の簡略化による生産性の向上と共に、トータルとしてのコストダウンが益々重要となっている。

【0005】以下、従来技術による結晶製造装置について、その1例としてシリコンの原料多結晶製造装置及び単結晶製造装置を例として説明する。

【0006】従来技術によるシリコン単結晶の製造方法は、まづ、（1）通電加熱したシリコン芯結晶棒に高純度原料ガス（例えば、モノシラン $\text{SiH}_4$ 、トリクロル・シラン $\text{SiHCl}_3$ と水素ガス等）を吹き付けて、前記芯棒上に多結晶シリコンを折出成長させて多結晶棒を作り、（2）この多結晶棒を切断、粉碎し、あるいは外形を成形し、エッチング純水洗浄、乾燥させて原料多結晶を作製し、次に（3）石英るつぼ中で再加熱熔融した後、引上法により単結晶成長を行うというものである。また、単結晶成長の方法として、多結晶棒の先端を加工成形し、高周波コイルにより先端部を加熱熔融させて種子付けを行い、浮遊帯熔融法により単結晶成長を行う方法が用いられることもある。

【0007】シリコン単結晶の製造方法に関する他の従来技術として、例えば、米国特許明細書第2,964,396号等に記載された技術が知られている。この従来技術は、原料ガスから直接単結晶を製造するというものである。

【0008】図32は原料ガスから直接単結晶を製造する従来技術による結晶製造装置を説明する図である。図32において、1は加熱用コイル、5はガス導入口、6はガス導入用細管、7はガス吹き出し口、16は原料熔融液（熔融帯）、18は単結晶インゴット（高純度シリコンロッド）、26は石英管である。

【0009】図32（a）、図32（b）に示す例は、いずれも、高周波加熱を用いてシリコン棒の一端に熔融帯を作り、この熔融帯に向ってシリコンの原料ガスを吹き付け、その熱分解あるいは還元反応によりシリコンを折出・溶解させて、熔融帯中に原料供給を行い、シリコン棒を移動させて結晶を成長させる製造装置を示している。

【0010】図32（a）に示す装置は、石英管26で作られた反応容器、石英管26の底部26-1に溶接固定され、原料ガス（例えば、 $\text{SiHCl}_3$ 、 $\text{SiH}_4$ と水

素等)を反応容器内に導入するガス吹き出し口7及びガス導入口5を有する導入用細管6、反応容器内にセットされた高純度シリコンロッドである単結晶インゴット18、及び、石英管26の周囲に設けられた加熱用コイル1とにより構成されている。

【0011】前述のように構成される装置において、反応容器内の単結晶インゴット18の下部は、容器26の外周部に設けられる加熱用コイル1に高周波電流を流すことにより溶融されて溶融帯16が形成されている。この溶融帯16に向ってガス導入用細管6のガス吹き出し口7より原料ガスが吹き付けられ、溶融帯16の表面で原料ガスが還元反応あるいは熱分解反応して、高純度のシリコンが得られる。この反応は、約900℃で起り、折出物は直ちに溶融帯16に吸収され、シリコンロッド18の下端部に表面張力により保持される。シリコンロッド18は、折出量と同期して上方に引き上げられ結晶成長が行われる。

【0012】図32(a)に示す装置は、前述のようにして単結晶シリコンを製造するものであるが、図32

(a)に示す装置は、180°回転しても同様に単結晶シリコンを製造することができる。この場合、溶融帯16は、シリコンロッド18の上部に保持されることになり、シリコンロッド18は、折出量と同期して下方に引き下げられることになる。

【0013】図32(b)に示す装置は、石英管26の側壁26-1に溶接固定された2本の原料ガス導入用細管6と、このガス導入用細管6と同一の位置に設けられる加熱用コイル1とを有し、石英管26内には、溶融帯16を挟んで上下両側に高純度シリコンロッド18-1、18-2が保持されて構成されている。溶融帯16は、石英容器26の外側より加熱用コイル1によって前述と同様に加熱されている。石英容器26の壁に溶接固定された両側のガス吹き出し口7より、溶融帯16に向って原料ガスが吹き付けられ、図32(a)におけると同様に溶融液状の高純度シリコンによる溶融帯16が得られる。上下のシリコンロッド18-1、18-2は、単純にあるいは相対的に回転、上下方向に移動しつつ、原料ガスからのシリコン折出により増加する溶融帯16から上下方向に結晶成長されて行く。

【0014】図32(b)に示す装置は、図32(a)に示す装置より効率的に単結晶シリコンを製造することができる。

【0015】なお、シリコン単結晶の製造方法に関する本発明に関連する技術として、例えば、特開昭46-5425号公報、特公昭60-46072号公報に記載された技術が知られている。この技術は、環状誘導加熱コイルにガス吹き出し口(ノズル)を連結して用いたもので、原料多結晶棒を用いた浮遊帯溶融法によるバルクシリコン棒の製造において、コイル中央部の浮遊帯溶融液に向って、微量のドーピング用物質を吹付け、これを吸

収させて比抵抗コントロールのためのドーピングを行うというものである。

#### 【0016】

【発明が解決しようとする課題】前述で説明した前者の従来技術による単結晶製造方法は、多結晶インゴット製造工程(熱分解法、還元法等)、加工工程(切断、破碎、形状整形、エッチング、洗浄、乾燥等)、単結晶成長工程(引上法、浮遊帯法等)と多くの工程を必要とし、途中工程での原料損失、加熱・冷却により電力(電力、水)の損失が多く、また、石英、カーボンによるつぼの消耗が大きく、コストダウンが困難であるという問題点を有している。以下、この従来技術による各製造工程の問題点を説明する。

【0017】(1)多結晶インゴットの製造工程：長尺のシリコン芯棒(1.5m~2.0m)を引上法等により製作し、これを通電により加熱(800℃~1100℃)しつつ、原料ガス(例えば、 $\text{SiH}_4/\text{H}_2$ 、 $\text{SiHCl}_3/\text{H}_2$ 等)の供給を行い、芯棒表面に気相反応(分解あるいは還元反応)により多結晶折出を行い多結晶インゴットの製作を行っている。高温の多結晶インゴットは内部歪が大きく、破損し易いため、時間をかけてゆっくり冷却する必要があった。また、通電のため多量の電力を必要とした。

【0018】(2)加工・成形工程：多結晶インゴットからのカットロッドの切出し、破砕片の作成、あるいは、浮遊帯法単結晶作成用インゴットの外径・形状の整形、及び、洗浮・乾燥を行っている。このため、外形加工、エッチング等による加工ロスが発生する。

【0019】(3)結晶成長工程：前記カットロッドならびに破砕片の原料多結晶を石英るつぼ中に設置し、主として側面より抵抗加熱によりこれを溶解し、種子付を行った後、単結晶を引上げる引上法、あるいは、外径・形状の整形を行った大形の多結晶インゴットの下端部を高周波誘導加熱により一部溶融帯を作り、これに種子結晶を用いて種子付をした後、単結晶を成長(浮遊帯溶融法)させる。引上法の場合、原料の再加熱(溶融)による電力損失が生じる。浮遊帯溶融法の場合、大形の多結晶棒を必要とし、さらに結晶成長中の電力の約40%が上部多結晶インゴットの保温、溶解に消費された電力損失を生じる。

【0020】また、原料ガスより直接単結晶を製造する後者の従来技術は、①石英管外部より高周波誘導加熱を行うため、メルト表面とコイルとの間の距離が大きく、電力ロスが大きい、②保持できる浮遊帯の直径がメルトの表面張力により限定されるため大口径の結晶成長が困難である(直径25mm以下)、③メルトの表面積が小さく、供給原料ガスの液体折出化効率が悪い、④未反応ガスの損失が大きい、⑤石英管壁が加熱(Hot Wall)されて、管壁への結晶折出が起り内部観測が困難となる、⑥溶融体近辺の高温結晶部に多結晶折出が起り易



く、単結晶成長が困難となる等の問題点を有している。

【0021】本発明の目的は、前述した従来技術の問題点を解決し、大口徑、高品質の単結晶の製造を、原料ガス（気相）より直接単結晶（固体）成長まで連続して1つの工程により行うことを可能にし、生産性の向上、トータルコストダウン、装置の小形化、省エネルギー化を実現すると共に、多くの応用を可能とする結晶の製造方法及び製造装置を提供することにある。

【0022】

【課題を解決するための手段】前記目的を達成するため、本発明は、気相原料ガスを高温固体表面あるいは高温熔融液体表面に供給して反応（熱分解あるいは還元反応）させ、原料成分の折出と溶解とを行いつつ、同時に直接固体結晶（多結晶、単結晶）を製造するVLS法（Vapor Liquid Solid Method）を使用するものであり、以下に述べる特徴を有している。

【0023】（1）本発明は、反応室内（減圧、常圧、あるいは加圧）において、上部発熱固体の底部（下部）表面に対向して、ガス吹き出し口が連結された平面状あるいは曲面状誘導電界を構成するコイル面を有する高周波コイルを配置し、前記発熱固体に対して前記高周波コイルにより誘導加熱を行い、さらに、前記発熱固体の底部表面に前記ガス吹き出し口より原料ガスを供給し、前記発熱固体の底部表面に成分元素あるいは化合物の折出と溶解とを周期的あるいは連続的にを行い、その熔融液を前記上部発熱固体の底部より滴下あるいは下流流出させることを特徴とする。

【0024】（2）本発明は、反応室（減圧、常圧力あるいは加圧）において、上部発熱固体とその保持装置、上部発熱固体の底部（下部）にこれと対向して配置された少なくとも1個の原料ガス吹き出し口を有する水冷された高周波コイルと前記高周波コイルに電力を供給する高周波発振装置、少なくとも1種類の原料ガスを供給する原料ガス供給装置、滴下する熔融液滴の冷却固化装置あるいはその液滴を回転固体と衝突せしめて分散（細分化）後に冷却固化せしめる細分散化装置、及び、粒状結晶受容器とその保持装置を備えることを特徴とする。

【0025】（3）本発明は、前記反応室において、上部発熱固体とその保持装置、発熱固体の底部（下部附近）に配置された少なくとも1個の原料ガス吹き出し口を有する水冷された高周波コイルと前記高周波コイルに電力を供給する高周波発振装置、少なくとも1種類の原料ガスを供給する原料ガス供給装置、滴下あるいは下降流出する熔融液を受ける容器（るつぼ）及びその保持装置、前記容器の加熱装置を備えることを特徴とする。

【0026】（4）本発明は、前記滴下熔融液を受ける容器（るつぼあるいは熔融液を含むるつぼ）及びその保持装置、前記容器の加熱及び温度調節装置、前記容器内熔融液のほぼ中央附近に配置された種子結晶あるいは結晶インゴット及びその保持装置を備え、前記容器内に前

記滴下あるいは下降流出熔融液を供給あるいは連続して供給しつつ、引上法により、前記容器内熔融液より前記種子結晶あるいは単結晶インゴットを用いて種子付及び結晶成長を行うことを特徴とする。

【0027】（5）本発明は、前記反応室において、上部発熱固体とその保持装置、上部発熱固体の底部（下部附近）に配置された少なくとも1個の原料ガス吹き出し口を有する水冷された高周波コイルと前記高周波コイルに電力を供給する高周波発振装置、少なくとも1種類の原料ガスを供給する原料ガス供給装置、前記コイル直下に配置されその上部に熔融帯を保持するための下部発熱固体（種子結晶、単結晶あるいは多結晶インゴット）とその保持装置を備え、前記下部発熱固体の上部に保持された熔融帯に前記上部発熱固体の下部表面に生ずる折出熔融液からの滴下熔融液あるいは下降流出液を供給しつつ、下部発熱固体上に浮遊帯法により結晶成長を行うことを特徴とする。

【0028】（6）本発明は、上部発熱固体とその保持装置、発熱固体の底部（下部附近）に配置された少なくとも1個の原料ガス吹き出し口を有する水冷された高周波コイルと前記高周波コイルに電力を供給する高周波発振装置、少なくとも1種類の原料ガスを供給する原料ガス供給装置、前記コイル直下に配置された第2の高周波コイル、前記第2コイルの直下に配置され上部に熔融帯を保持するための下部発熱固体（種子結晶、単結晶あるいは多結晶インゴット）とその保持装置を備え、前記下部ロッドの上部に保持された熔融帯に前記上部発熱固体の下部表面に生ずる折出熔融液からの滴下熔融液あるいは下降流出熔融液を供給しつつ、下部発熱固体上に浮遊帯法により結晶成長を行うことを特徴とする。

【0029】（7）本発明は、発熱固体の下部中央附近にコイル面中央部の孔を貫通して設けられた突起部を有する上部発熱固体とその保持装置、上部発熱固体の底部（下部附近）に配置された少なくとも1個の原料ガス吹き出し口を有する水冷された高周波コイルと前記高周波コイルに電力を供給する高周波発振装置、少なくとも1種類の原料ガスを供給する原料ガス供給装置、前記突起部先端（下部）に接しあるいはその極く近傍に配置された種子結晶とその保持装置を備え、前記突起部先端（下部）に前記下降流出熔融液（滴）を保持しつつ種子付けを行うことを特徴とする。

【0030】（8）本発明は、底部に少なくとも1個の孔を有する障壁囲いとその保持装置、前記障壁囲いの底部の孔に接しあるいはその極く近傍に配置された種子結晶とその保持装置を備え、前記滴下あるいは下降流出熔融液を、前記障壁囲い内の前記孔近傍に保持しつつ種子付けを行うことを特徴とする。

【0031】（9）本発明は、保持された発熱固体の上部表面附近部を、これと対向して配置された高周波誘導コイル面内に少なくとも1個の原料ガスの吹き出し口を

有する水冷された高周波コイルにより高周波誘導加熱し、その加熱された前記発熱固体の表面附近に、前記ガス吹き出し口より前記成分元素を含む原料ガスを吹き付け、前記発熱固体表面で前記成分元素あるいは化合物の折出と溶解とを周期的あるいは連続的にを行い、その熔融液を前記発熱固体の上部に保持しつつ、あるいは、下降流出（滴下）あるいは回転飛散せしめて結晶製造を行うことを特徴とする。

【0032】(10) 本発明は、発熱固体とその保持装置、前記発熱固体の上部に前記熔融液を保持し、少なくとも1個の原料ガス吹き出し口を有する水冷された高周波コイルと前記高周波コイルに電力を供給する高周波発振装置、少なくとも1種類の原料ガスを供給する原料ガス供給装置を備え、前記発熱固体上部に形成された熔融帯に前記原料ガスを供給しつつ、前記発熱固体上に浮遊帯法により結晶成長を行うことを特徴とする。

【0033】(11) 本発明は、ほぼ中央部附近に突（高）部を有する傘形発熱固体と回転可能なその保持装置を備え、前記高周波コイルによる加熱と原料ガス吹き付けを行い、前記発熱固体上面部に形成された熔融液（滴）を前記発熱固体の周辺より重力による滴下あるいは前記発熱固体の回転による遠心力によりこれを細かく飛散して冷却固化し、粒状結晶を作ることを特徴とする。

【0034】(12) 本発明は、ほぼ中央部附近に底部を有し、底部に少なくとも1個の孔を有する漏斗状の発熱固体とその保持装置、前記発熱固体の上部に配置された原料ガス吹き出し口を有する高周波コイル、上部に熔融帯を保持する下部発熱固体とその保持装置及びその加熱装置（第2の高周波コイル）を備え、前記発熱固体の上部に形成された熔融液を前記発熱固体のほぼ中央部にもうけられた孔より滴下せしめ、前記下部発熱固体上に供給し、第2の高周波コイルによる加熱によって熔融帯を保持しつつ、浮遊帯法により結晶成長を行うことを特徴とする。

【0035】(13) 本発明は、前記中央部に孔を有する漏斗状発熱固体とその上部に配置された原料ガス吹き出し口を有する前記高周波コイル、熔融液を保持するつぼとその加熱装置、前記するつぼ内の熔融液上のほぼ中央附近に配置された種子結晶とその保持装置を備え、前記漏斗状の発熱固体の上部に形成された熔融液を前記発熱固体のほぼ中央部に設けられた孔より滴下せしめて、前記するつぼ内の熔融液に供給し、前記種子結晶を用いて前記するつぼ内の熔融液より引上法によって結晶成長を行うことを特徴とする。

【0036】(14) 本発明は、コイル両面に少なくとも1個の原料ガス吹き出し口を有する水冷された高周波コイルに対し、上部発熱固体と下部発熱固体とを配置し、前記上部発熱固体の下部表面に原料ガス供給により発生する折出熔融液（滴）を下方に滴下あるいは下降流出せ

しめて下部発熱固体上部に保持された熔融帯に供給し、同時に前記下部発熱固体上部に保持された熔融帯に不活性ガスあるいは原料ガス供給により発生する折出熔融液を供給しつつ下部発熱固体上に浮遊帯法により結晶成長を行うことを特徴とする。

【0037】(15) 本発明は、前記ガス吹き出し口を有する水冷された高周波コイルのなす断面構造が漏斗状あるいは曲面（容器）状をなし、そのコイルの内面にそって前記ガス吹き出し口を配置し、その内面側に原料熔融液体を配置し、ガス吹き出しによる浮揚力、及び、コイルと前記熔融液体との間の電磁浮揚力により熔融液を空中に保持しつつ、これに不活性ガスあるいは原料ガスの供給を行うことを特徴とする。

【0038】(16) 本発明は、前記中空に保持された生成原料熔融液体に、種子結晶、単結晶あるいは多結晶棒等の固体を接続し、前記熔融液体より結晶成長を行うことを特徴とする。

【0039】(17) 本発明は、前記滴下あるいは下流流出熔融液を熔融帯として保持する、前記コイルの直下に配置されその上部に熔融帯を保持する下部発熱固体とその保持装置、前記熔融帯を取囲んで配置された複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性外障壁とその保持装置を有することを特徴とする。

【0040】(18) 本発明は、前記下部発熱固体の上部に形成された熔融帯と前記熔融帯を取囲んで配置された複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性障壁とその保持装置を備え、前記発熱固体上部に形成された熔融帯に前記ガス吹き出し口を有する高周波コイルより原料ガスを供給しつつ、前記発熱固体上に浮遊帯法により結晶成長を行うことを特徴とする。

【0041】(19) 本発明は、前記下部発熱固体の上部に形成された熔融帯と前記熔融帯を取囲んで配置された複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性障壁とその保持装置を備え、前記外障壁がその内面にガス吹き出し口を有し、前記発熱固体上部に形成された熔融帯に、前記高周波コイルあるいは前記金属性外障壁より、不活性ガスあるいは原料ガスを供給しつつ、前記発熱固体上に浮遊帯法により結晶成長を行うことを特徴とする。

【0042】(20) 本発明は、前記上部固体の加熱された下部表面に、前記高周波コイルに備えられた原料ガス吹き出し口より原料ガスを吹き付けて原料熔融液滴を発生させ、この液滴を前記コイルの下部に配置された前記下部固体上部に保持された熔融液帯に供給し、前記熔融液帯を取囲んで配置された、複数の絶縁縦溝を有する冷却された金属性外障壁より、不活性ガスあるいは原料ガスを供給しつつ、前記発熱固体上に浮遊帯法により結晶成長を行うことを特徴とする。

【0043】(21) 本発明は、前記上部固体の加熱された下部表面に、前記高周波コイルのガス吹き出し口より原料ガスを吹き付けて原料熔融液滴を発生させ、この滴



下あるいは下降流出熔融液を、前記コイルの直下に配置され、水冷された、複数の絶縁縦溝を有する、金属性外障壁と上部に水平面を有する金属性底面によって構成される滴下熔融液の受容器に受け、その受容器を回転し、序冷して、多結晶平板あるいは多結晶インゴットの製造を行うことを特徴とする。

【0044】(22) 本発明は、ガス吹き出し口を有する複数の絶縁溝を有する金属性導電体容器内に金属熔融液を配置し、前記金属性導電体容器の外側に高周波コイルを配置し、前記高周波コイルにより前記熔融液体を加熱し、発生する局所的誘導電磁力及び前記金属導体内面に吹き出すガス圧力によって前記熔融液体を非接触状態に保持し、前記熔融液体に原料となる成分元素ガス、熔融液滴あるいは固体結晶（粒状あるいはインゴット）を供給しつつ、この熔融液体に種子結晶あるいは結晶インゴットを接続し結晶成長を行うことを特徴とする。

【0045】(23) 本発明は、前記水冷されたガス吹き出し口を有する高周波コイル面あるいは絶縁縦溝を有する導電性金属障壁面を貫通して、少なくとも1個の孔あるいは透明固体による光導路を設け、前記光導路を通して長波長（赤外線）の光、あるいは、短波長（紫外線）の光を前記発熱固体の発熱あるいは反応表面に照射する手段を備えたことを特徴とする。

【0046】(24) 本発明は、前記高周波コイル面あるいは絶縁縦溝を有する導電性金属障壁面を貫通して、少なくとも1個の孔あるいは透明固体による光導路を設置し、前記光導路を通して前記発熱固体の表面温度を検出する手段と、検出された出力信号を帰還回路を介して受け、高周波発振回路の出力を調節して前記発熱固体の温度を調節する手段を備えたことを特徴とする。

【0047】(25) 本発明は、前記発熱固体の周囲に水冷された外筒を配置し、前記発熱固体と前記外筒との間に不活性のガスを流し、反応生成物の発熱固体側面への折出を防止することを特徴とする。

【0048】(26) 本発明は、前記発熱固体の周囲に水冷された外筒を配置し、前記発熱固体と前記外筒との間に不活性ガスを流すと共に、前記外筒の外周囲に第2の外筒あるいは排気口を配置し、前記外筒と前記第2の外筒との間あるいは排気口から排気を行い、反応生成ガスを速かに排出させることを特徴とする。

【0049】(27) 本発明は、前記第2の外筒を透明絶縁体あるいは覗き穴（観測用窓）を有する金属あるいは不透明固体で構成し、絶縁体を介して前記高周波コイルあるいは前記コイルの絶縁支持体と接続していることを特徴とする。

【0050】(28) 本発明は、前記高周波コイルに対し、前記上部発熱固体の配置されたコイル面と反対側のコイル面に、絶縁体を介して前記上部発熱固体のほぼ中央部の熔融液滴下位置に対向して、熔融液（滴）取り出し用の開口部（孔または円筒）を有するキャップ（カバ

一）を配置し、コイル面とキャップとの間に不活性ガスを流すことを特徴とする。

【0051】(29) 本発明は、前記高周波コイルに対し、前記下部発熱固体の配置されたコイル面と反対側のコイル面に絶縁体を介してキャップ（カバー）を配置し、コイル面とキャップとの間に不活性ガスを流すことを特徴とする。

【0052】(30) 本発明は、前記高周波コイルのガス吹き出し口が、少なくともコイルの片面に設けられ、前記発熱固体表面に向かって少なくとも1個設けられていることを特徴とする。

【0053】(31) 本発明は、前記高周波コイルあるいは絶縁縦溝を有する導電性外障壁のガス吹き出し口が、少なくともコイルの片面、あるいは、前記導電性外障壁に設けられて、前記発熱固体表面に向って少なくとも1種類のガス吹き出し口が設けられていることを特徴とする。

【0054】(32) 本発明は、前記高周波コイルあるいは絶縁縦溝を有する導電性外障壁のガス吹き出し口のガス吹き出し方向が、前記発熱固体あるいは熔融液の表面に対し、垂直あるいは傾斜角度を持っていることを特徴とする。

【0055】(33) 本発明は、前記上部発熱固体の下部表面の加熱手段及び前記下部発熱固体の上部に熔融帯を形成するための加熱手段が、少なくとも1個の前記高周波誘導コイルと、前記高周波コイルに電力を供給する高周波発振装置とにより構成されることを特徴とする。

【0056】(34) 本発明は、前記ガス吹き出し口を有する水冷された高周波コイルあるいは絶縁縦溝を有する導電性外障壁が、金、銀、銅、アルミニウムあるいはそのメッキ等により構成され、前記ガス吹き出し口を有する側の前記コイル面が鏡面であることを特徴とする。

【0057】(35) 本発明は、前記ガス吹き出し口を有する水冷された高周波コイルあるいは絶縁縦溝を有する導電性外障壁とガス導入管の接続点とが接地されていることを特徴とする。

【0058】前述した特徴を備える本発明は、原料となる多結晶棒を用いることなく、成分元素を含む、原料ガスを供給し、これを原料供給源として直接単結晶、多結晶（粒状あるいはインゴット）製造を行うことを目的とするもので、固体表面あるいは保持された熔融液帯の表面を、高周波誘導コイルによる加熱により、折出成分（元素あるいは化合物）の溶融点温度以上に保ちつつ、前記高周波コイル表面、あるいは、前記複数の絶縁縦溝を有する金属性導電性体障壁の表面に設けられたガス吹き出し口より、前記高温表面に、至近距離より原料成分ガスを吹き付けることにより、その表面で成分元素あるいは化合物の分解折出と溶解を行うものである。すなわち、本発明は、原料ガスの供給を行いつつ、その熔融液から直接浮遊帯法により、あるいは、るつぼ内に供給し

た熔融液からの引上法により単結晶成長を行うものである。また、本発明は、折出・熔融液より粒状結晶や多結晶インゴットの製造をも行うことができる。

【0059】本発明は、すでに述べたように、原料ガス吹き出し口を有する水冷された高周波コイルあるいは複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体障壁を用いて、固体発熱体あるいは熔融液の表面を、折出成分の融点以上に加熱しつつ同時に極く近傍より、前記高温部表面に前記ガス吹き出し口より原料ガスを吹き付け、その表面で分解あるいは還元により生じた成分（元素あるいは化合物）を直ちに溶解させ、発生した溶解液を、下方に流出（滴下あるいは下降流出）させ、あるいは、固体結晶上の熔融液帯として保持しつつ、単結晶インゴット上部に保持された熔融液帯に、熔融原料として前記下降流出液を供給することにより、あるいは、固体結晶上に保持された熔融液帯中に、その表面で発生した熔融液を熔融原料として保持することにより、原料多結晶インゴットを用いることなく、浮遊帯熔融法により単結晶成長を行うことを特徴としている。

【0060】ここで特筆すべきことは、従来の浮遊帯法の構成は、固体（原料多結晶）－液体（熔融液帯）－固体（単結晶）であるが、本発明のVLS法を用いた浮遊帯法の構成は、気体（原料成分ガス）－液体（熔融液帯）－固体（単結晶）で、原料となる多結晶を用いず、従って、多結晶の製造工程と、その再熔融加熱工程とを必要とせず、原料ガスから直接、連続して単結晶を製造することができるものであり、従来技術の構成と原理が全く異なることである。また、本発明は、カーボンつばに保持された石英つば内で加熱保持された原料熔融液に、前記滴下熔融液も熔融原料として連続供給しつつ、前記熔融液表面より引上法により、大型（大口徑、長尺）の単結晶成長を行うことを可能にしたこと特徴としている。

【0061】従来の連続引上法は、追加供給原料として粒状結晶が用いられているが、粒状結晶が固体のため熔融しにくく、また、飛散により容器器壁での多結晶核折出や成長単結晶の多結晶化を生じ易く実用化が遅れており、また、多結晶棒の一部を加熱溶解して滴下させ追加原料とする方法もあるが、装置が大型となる等の問題があったが、本発明は、従来技術におけるこれらの問題点を解決することができる。

【0062】すなわち、本発明は、原料多結晶インゴットを用いることなく、原料となる成分熔融液とその供給とを直接原料ガスから行うことが可能となり、従来技術で必要とした多結晶インゴットの製作、その加工成形、再溶解等の多くの工程を必要とせず、工程の省略、加工ロスの減少、電力消費の削減、製造装置の小型化による大幅なコストダウンを計ることができるものである。さらに、本発明は、多くの結晶製造方法に応用することができる等、全く新しい製造方法と装置を提供することが

できる。

【0063】本発明は、さらに、原料ガス吹き出し口を有する高周波コイルを用いて、コイル上部に保持された上部発熱固体の下部表面を折出成分元素、あるいは化合物の融点以上に加熱し、発熱表面に向って前記ガス吹き出し口より成分原料ガスを吹き付けて成分原料熔融液滴を発生させ、前記発生した熔融液を前記固体下部のほぼ中央附近より下方に下降流出あるいは滴下させ、そのまま結晶成分用原料として熔融液の供給を行うことができる。

【0064】また、本発明は、前記発生した下降流出あるいは滴下する液滴を不活性ガス中でそのまま冷却、あるいは、回転体に衝突飛散させて細粒化し、冷却して、これを容器に受けることにより高純度の粒状結晶を得ることができる。

【0065】また、本発明は、前記発生した下降流出熔融液を容器（例えば、石英るつぼ）に供給し、序冷して多結晶インゴットを得ることができる。

【0066】また、本発明は、加熱保持された石英るつぼ等の容器に発生した下降流出熔融液を供給し、その熔融液表面より種子付を行い、引上法によって単結晶成長を行うことができる。

【0067】また、本発明は、前記高周波コイルの下部に配置され、固体上部に保持された熔融液帯に前記流出熔融液を供給しつつ浮遊帯法により単結晶成長を行うことができる。

【0068】また、本発明は、前記浮遊帯法により単結晶成長を行うに当り、前記発熱固体の下部突起部先端に少量の熔融液滴を保持しつつ、これに種子結晶先端をなじませて、直接種子付を行うことができる。

【0069】また、本発明は、前記滴下熔融液滴を、底部に穴を有する障壁筒（皿）内に供給し、前記穴の下部より種子結晶をなじませて種子付を行うこともできる。

【0070】さらに、本発明は、原料ガス吹き出し口を有する高周波コイルを用いて、コイル下部に配置された発熱固体上部に保持された熔融液帯表面に、前記コイルの下側のガス吹き出し口より原料ガスを供給し前記原料熔融液の発生（原料供給）とその浮遊帯域の保持を行い、そのまま結晶成長用原料として熔融液の供給を行うことができる。

【0071】また、本発明は、前記発熱固体（インゴット）上に保持された熔融液に前記原料熔融液を供給しつつ、前記インゴットを下降冷却することにより、単結晶あるいは多結晶インゴットを得ることができる。

【0072】また、本発明は、前記コイル下部に傘形発熱固体を配置し、その上部面で前記熔融液を発生させ、前記傘形固体を高速回転させて、遠心力により熔融液を飛散細分化し、これを冷却することによって粒状結晶を得ることができる。

【0073】また、本発明は、前記コイル下部に、中央

部に穴を有する漏斗状発熱固体を配置し、その上部面に原料ガスを供給して前記熔融液を発生させ、前記中央部の穴より、熔融液滴を下降滴下させ、前記発熱固体下部に配置された第2の高周波コイルを用いて、発熱固体上部に保持された熔融帯に前記滴下熔融液を供給しつつ、浮遊帯法により単結晶成長させることができる。

【0074】また、本発明は、前記中央部に穴を有する漏斗状発熱固体上部面に発生した熔融液を、前記中央部の穴より滴下させて、その下部に配置された引上用つば内の熔融液に供給して、引上法により単結晶成長させることができる。

【0075】また、本発明は、水冷された上下両面にガス吹き出し口を有する高周波コイルとその上部及び下部に発熱固体とを配置し、上部固体の下部面と下部固体上とにより保持された熔融液表面に原料ガスを供給して、上部固体の下部面に発生する熔融液滴を下部固体上部の熔融帯に供給しつつ、同時に前記熔融帯表面に原料熔融液を発生しつつ、下部固体を降下させて浮遊帯法により単結晶成長を行うことができる。

【0076】さらに、本発明は、コイルの断面構造が漏斗状あるいは曲面（容器）状をなす面を構成する前記ガス吹き出し口を有する高周波コイルを用いて、その内面側に配置された原料熔融液体を、ガス圧ならびに電磁気力により空中に保持しつつ、原料ガスを供給して熔融液を発生させることができる。

【0077】また、本発明は、前記漏斗状あるいは曲面（容器）状をなす高周波コイルを用いて、その内面側に空中保持された原料熔融液体に原料ガスを供給すると共に、一方から種子結晶あるいは単結晶棒を接続して結晶成長を行うことができる。

【0078】さらに、本発明は、前記上部発熱固体の下部表面に原料ガスを吹き付け、発生した滴下原料熔融液を、下部発熱固体上部に保持された熔融液帯上に供給し、前記熔融液帯を取り囲んで、複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性障壁囲いを配置することにより、熔融液の安定保持を行うことができ、任意形状断面を有する単結晶インゴットの製作を行うことができる。

【0079】また、本発明は、前記下部固体上部に保持された熔融液帯表面にコイル下部ガス吹き出し口より原料ガスを供給し、原料熔融液の発生と供給とを行いつつ、前記熔融液帯を取り囲んで、前記複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性障壁囲いを配置することにより、熔融液の安定保持を行うことができ、任意形状断面を有する単結晶インゴットの製作を行うことができる。

【0080】また、本発明は、前記下部固体上部に保持された熔融液帯表面に前記コイル下部ガス吹き出し口により原料ガスを供給し、同時に前記熔融液帯を取り囲んで、複数の絶縁縦溝を有する水冷されたガス吹き出し口を有する金属性障壁囲いを配置し、前記熔融液帯表面に前記金属製障壁囲いのガス吹き出し口より原料ガスある

いは不活性ガスを供給することにより、電磁気力及びガス圧力により熔融液の安定保持を行うことができ、任意形状断面を有する単結晶インゴットの製作を行うことができる。

【0081】また、本発明は、前記上部発熱固体の下部表面に原料ガスを吹き付け、発生した滴下原料熔融液を、下部発熱固体上部に保持された熔融液帯上に供給し、同時に前記熔融液帯を取り囲んで複数の絶縁縦溝を有する水冷されたガス吹き出し口を有する金属性障壁囲いを配置し、前記熔融液帯表面に前記金属性障壁囲いのガス吹き出し口より原料ガスあるいは不活性ガスを供給することにより、電磁気力及びガス圧力により熔融液の安定保持を行うことができ、任意形状断面を有する単結晶インゴットの製作を行うことができる。

【0082】また、本発明は、前記上部固体ロットの底部面で発生した下降流出あるいは滴下する液滴を、底面を有する水冷された複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体障壁囲い内に供給して冷却固化させることによって、任意形状の板あるいはブロックを製作することができる。

【0083】また、本発明は、ガス吹き出し口を有し、複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体により構成される容器（るつぼあるいはポート）内に原料熔融液を配置し、前記容器の近傍あるいはその外部より高周波コイルによって熔融液を誘導加熱しつつ、前記ガス圧力及び電磁気力により熔融液を保持し、これに原料となる原料成分ガスを前記ガス吹き出し口より供給あるいは熔融原料液滴あるいは粒状結晶を供給しつつ、前記熔融液に固体結晶を接続して結晶成長を行うことができる。

【0084】本発明は、また、前記ガス吹き出し口を有する水冷された高周波コイルあるいは複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体（障壁、るつぼあるいはポート）の面を貫通して、穴あるいは光導路を設け、紫外線あるいは赤外線を照射し、成分ガスの折出反応の促進あるいは熔融液温度の検出と、検出温度計の出力を帰還回路により帰還することにより電源出力の調整を行い、直接熔融液温度の測定と温度制御を行うことができる。

【0085】本発明は、さらに、本発明の実施に当り、供給される原料ガスが、反応による熔融液発生を行う高温固体表面を除く発熱固体側面あるいは熔融液帯表面を除く熔融帯支持固体側面に廻りこみ、その表面で多結晶の折出を起すため、発熱固体の外周に水冷された第1の外筒を設けることにより、これ等固体側面に沿って不活性ガスを流すことにより、原料ガスの廻りこみとこの部分での多結晶折出（固化）とを防止している。

【0086】また、本発明は、反応生成ガスが原料ガスの種類によって塩素等の腐蝕性ガスを含み、それらのガスを反応室外へ速やかに排除することが望ましく、このため、前記第1の外筒の不活性ガス吹き出口近傍の外側に、これを取り囲んで第2の外筒（ガス吸引口）を配置し

て、反応生成ガスの強制排気を行っており、これにより、反応生成ガスの装置内への拡散、滞留を防止し、装置の小形化を図ることができ、コンパクトな原料熔融液供給ユニットとして用いることができる。

【0087】また、本発明は、前記第2の外筒が観測用窓（穴）を有しており、かつ、第2の外筒を絶縁体を介してコイル及びその支持体と接続することにより、内部（熔融体状態）の観測を容易にし、装置の小形化を図ることができる。

【0088】また、本発明は、前記上部発熱固体の配置された反対側のコイル面に、キャップ（カバー）を配置し、キャップのほぼ中央部に円筒状の穴を設け、前記キャップとコイルとの間に不活性ガスを流しつつ、前記キャップ中央部の穴より、滴下熔融液滴を取り出すことができる。

【0089】また、本発明は、前記下部発熱固体の配置された反対側のコイル面にキャップ（カバー）を配置し、前記キャップとコイルとの間に不活性ガスを流しつつ、結晶成長を行うことができる。

【0090】また、本発明は、ガス吹き出し口が、前記高周波コイルあるいは前記複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体の片面あるいは両面以上に設けられ、ガス吹き出し口の数を少なくとも1個設けることにより、原料ガス供給あるいは不活性ガス供給を目的に応じて行い、広範囲に均等なガス供給（反応）と生成ガスの排気（置換）とを行うことができる。

【0091】また、本発明は、前記供給ガスを少なくとも1種類供給するためのガス吹き出し口が設けられるため、複数種のガスを供給するガス吹き出し口を設けることにより、目的に応じて、原料ガス、不活性ガスあるいは相互に反応し易いガスの分離供給等を行うことができる。

【0092】また、本発明は、前記ガス吹き出し口のガス吹き出し方向が、発熱固体あるいは熔融液表面に対して、垂直あるいは傾斜角度を持っているので、原料ガスの均一な供給と反応生成ガスの置換とを良好に行うことができる。

【0093】また、本発明は、前記上部発熱固体の下部表面の加熱手段と、前記下部発熱固体の上部に熔融帯を形成するための加熱手段として、1個の前記ガス吹き出し口を有する高周波コイルのみでなく、目的に応じて、例えば、下部発熱固体の上部熔融液帯の加熱に第2の高周波コイルを設け、これを用いることにより、連続した原料の供給と連続した結晶成長とを行うことができる。

【0094】また、本発明は、前記高周波コイル及び複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体障壁（容器）のガス吹き出し口を有する面が、高い反射率を有する、金、銀、銅、アルミニウムあるいはそのメッキ等によって構成されることにより、輻射（熱放射）による熱損失を減らし、保温性を高め、かつ、前記コイルあるいは金属性

導電体の冷却効果を高める（省エネルギー）ことができる。また、その面を鏡面にすることによって効果を一層高めることができる。

【0095】また、本発明は、前記高周波コイル及び複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体障壁（容器）へのガス供給管の接続点を接地することにより放電等による事故を未然に防止（安全性向上）することができる。

【0096】

【発明の実施の形態】以下、本発明による気相-液相-固相の連続共存反応を用いたVLS法により、気相から直接結晶成長を行う結晶製造方法及び製造装置の実施形態を図面により詳細に説明する。

【0097】図1は本発明の第1の実施形態による装置の構成を説明する断面図、図2は図1の装置の上面より見た構成を説明する図である。図1、図2において、1は高周波コイル、1-1は金メッキされたコイル面、2-1、2-2はコイル端子、2-1'、2-2'は前記コイル端子への高周波電源からのリード線取付け孔またはネジ、3-1はコイル冷却水の取入口、3-2はコイル冷却水の取り出し口、4はコイル内冷却水の通路、5はガス導入口であり、高周波電圧の中間点で放電防止のため接地されている。6は高周波コイル内に設けられたガス導入用細管、7は高周波コイル面に設けられたガス吹き出し口であり、発熱固体8の下部表面に向かって配置されている。8-1は発熱固体表面で、ここでは、発熱固体8の下部中央部の突起部8-2と前記固体周辺との間に備けられた傾斜部である。8-1'は8-1表面に生成したシリコンの熔融液であり、発熱固体表面8-1の傾斜に沿って重力により中央突起部8-2に集まり、シリコン熔融液滴9となって下方に流出・滴下する。8-3は発熱固体8の上部突起部、10は上部突起部8-3を介して発熱固体8を支持する支持装置、11-1は平板コイル中央部の小口径の絶縁用の隙間孔、11-2は平板コイル端子間の絶縁用の隙間（スリット）でありコイル面に垂直あるいは斜めに形成されており、隙間には絶縁のため、通常、石英やサファイア等の固体あるいは平板が設置されている。

【0098】図1、図2に示す本発明の実施形態は、高周波コイル1の上に配置された発熱固体8の下部を高周波コイル1からの高周波誘導により自己発熱させ、固体下部8-1を反応生成物の融点あるいはそれ以上の温度（シリコンの場合、1416～1450℃）に保持し、この状態で、ガス導入口5より送られた反応ガスあるいは原料ガス（通常、キャリアガスとしての水素、窒素、アゴン等と混合されたガス）を、コイル面に設けられたガス吹き出し口7より、前記発熱された固体下部の表面8-1に向かって吹付け、前記固体表面8-1で成分ガスの反応（分解・折出）を行わせ、同時に成分元素あるいは成分化合物の溶解を行い、発生した成分元素の熔融液8-1'を発熱固体の傾斜面8-1に沿って固体突起

部8-2に集めて、熔融原料液滴9として滴下させるものである。

【0099】図1、図2に示す実施形態によれば、気相原料より多結晶棒製造と溶解の工程を経ることなく、効率良く直接原料熔融液滴を発生させることができる。本発明においては、後述する実施形態により説明するように、発生した原料熔融液滴を用いて粒状結晶、板状結晶、多結晶及び単結晶インゴットを連続して製造する方法及び装置をも提供することができる。

【0100】前述した実施形態により生成された熔融原料液滴9を使用してシリコン多結晶あるいは単結晶成長を行わせる場合、原料ガスとしてはシラン系ガス（例えば、 $\text{SiH}_4$ 、 $\text{SiHCl}_3$ 、 $\text{SiH}_2\text{Cl}_2$ 、 $\text{SiCl}_4$ 等）と水素の混合ガスが用いられる。また、原料ガス中に、不純物ガス（ $\text{B}_2\text{H}_6$ 、ホスフィン $\text{PH}_3$ 、アルシン $\text{AsH}_3$ 等）を比抵抗調整のため必要量加えることができる。また、前述した反応は、常圧あるいは減圧の何れの場合にも行わせることができる。

【0101】前述した実施形態における発熱体となる発熱固体8は、金属ワイヤ、石英、水冷された金属棒等の支持装置10によって支えられ、上下動ならびに回転が可能である。発熱固体8は、例えば、高純度カーボン、炭灰珪素、シリコン（析出成分と同質固体）、金属等を成形して用いられ、必要に応じて石英、サファイア等で被覆されたものでもよい。

【0102】図2に示す図1の高周波コイルの上面から見た断面構成において、コイル1は、円板状の中空構造に構成され、中央部の小口径の隙間孔11-1とコイル面とに垂直あるいは斜めに形成された隙間11-2によって絶縁されて形成されている。そして、コイル1は、端子2-1、2-2により両端子に高周波電力（電流、電圧）が供給されている。コイル1は、冷却水取り入れ口3-1、冷却水通路4、冷却水取り出し口3-2により構成される冷却水通路に流される冷却水により冷却されている。コイル中央部の小口径隙間孔11-1は、円形、楕円形、スリット（溝）付等の変形が可能である。また、コイル面の形状は、前記孔11-1に対し、対象でも、非対象（偏芯、変形）でもよい。

【0103】高周波コイル1内に設けられたガス通路であるガス導入用細管6は、図2に示すように、複数のリング状の通路に分岐されて形成されてコイル1内に配置されており、リング状部分に、多数のガス吹き出し口7が設けられている。

【0104】供給ガスは、ガス導入口5より供給され、コイル内に破線で示されたガス通路6を通して、ガス吹き出し口7から発熱固体8の下部表面8-1に近距離から吹付けられる。コイル1内に導かれる供給ガスは、通路6が分岐した配管によりコイル内面に接続されて冷却されている。また、ガス吹き出し口7は、コイル面に向かって複数の孔を有している。ガス配管は、例えば、ス

テンレス管、銅管が用いられる。ガス導入5は、コイル端子間の高周波電圧の中間電圧点で接地されており、ガス配管と装置間との間での放電等による事故を防止するものである。固体発熱体8も、必要に応じて接地することができる。

【0105】図3は本発明の第1の実施形態による装置の変形例の構成を説明する断面図、図4は図3の装置の上面より見た構成を説明する図である。

【0106】図3、図4はに示す例は、図1、図2に示した例におけるコイル1を円板状の金属性平板で構成し、ガス通路6、冷却水の通路4を金属板の切削、溶接加工により作成したもので、その他は、図1、図2の場合と同様に構成されている。金属材料としては、例えば、銅、銀、金等が用いられる。

【0107】そして、この例における高周波コイル1内に設けられたガス通路であるガス導入用細管6は、図4に示すように、コイル1の外周部に近い位置に配置されたリング状の通路と、該通路から中心部に向かって分岐された複数の直線状の通路を備え、直線上の通路にガス吹き出し口7が設けられている。

【0108】図1～図4に示す装置は、上部固体8の底辺表面8-1が高周波コイル1の近くに配置されており（コイル面1-1と底辺表面8-1との距離＝5mm～25mm）、効率（結合変換効率）よく誘導結合して、高周波誘導電流を発熱固体8内に発生させることができる。そして、発熱固体8は、高周波電流の表皮効果により、固体表面で自己発熱をする。高周波周波数は、数千ヘルツから10数メガヘルツが用いられ、また、複数の周波数を混合したものでもよい。

【0109】発熱固体8として高純度シリコンを用いる場合、その比抵抗は室温において、通常、 $10^3$ オーム・センチメートル（ $\Omega \cdot \text{cm}$ ）から $10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$ の広範囲にわたって変化している。従って、シリコンが低抵抗（数 $\Omega \cdot \text{cm}$ 以下）の場合、発熱固体8は、誘導電流が流れ易く容易に自己発熱し、容易に加熱することができる。一方、シリコンが高抵抗の場合、初期誘導電流が流れにくいために昇温に時間がかかる。しかし、シリコン結晶は、室温で高抵抗（ $10 \Omega \cdot \text{cm} \sim 1000 \Omega \cdot \text{cm}$ ）であっても、 $400^\circ\text{C} \sim 600^\circ\text{C}$ の温度で、比抵抗が $1 \Omega \cdot \text{cm} \sim 0.1 \Omega \cdot \text{cm}$ となり、誘導電流が流れ易くなる。従って、加熱初期に補助的な間接加熱により、発熱固体の一部に $400^\circ\text{C} \sim 600^\circ\text{C}$ の予熱を加えることにより容易に自己発熱を行わせることができる。通常、この予熱は、炭素片をコイルに近づけて昇温させ、これをシリコン固体による発熱固体8近づけることにより行うことができる。

【0110】前述した本発明の実施形態は、高温に保持された固体表面にこれと対向して近距離より、コイル面に設けられたガス吹き出し口7よりガスが供給されるため、別途のガス供給装置を必要とせず、反応室の構造を



簡単にすることができ、必要領域に原料ガスを至近距離から有効に吹付けられるため、固体表面への供給ガス流速が早く、反応生成ガス、例えば、水素、塩素、塩化水素あるいはシリコン塩化物等を速やかに排除することができる。従って、その表面での反応速度あるいは原料溶液の発生速度を著しく向上させることができる。

【0111】図5は図1～図4により説明した実施形態における平板状単巻コイル1と同一の機能を持つ平板状複数回巻コイルを用いた装置の例を示す図である。

【0112】図5(a)に示す例は、複数のコイルをほぼ平面となるように配置して高周波コイル1を形成し、コイル端子3-1にガス導入口5を設け、ガス導入口5から供給されたガスは、発熱固体8の底面と対向する面に沿って設けられたガス吹き出し口7より加熱された固体底面8-1に吹付けられて供給されている。

【0113】図5(b)に示す例は、図5(a)の場合と同様な機能をもつ漏斗状複数回巻コイルによる高周波コイル1を用いた例である。この例は、複数のコイルの上面が漏斗状になるように配置して高周波コイル1を形成し、この漏斗状の面に沿った形状に発熱固体8の突起部8-2を形成したものである。このため、図示例は、発熱固体8の突起部下面8-1の面積、すなわち、反応面積をより広くすることができる。

【0114】図5(a)、図5(b)に示す平板状あるいは漏斗状複数回巻コイルは、多重の複数回巻コイルでもよく、また、複数回巻の平板状高周波コイルは、中心部より、外周方向に少なくとも1ゾーン(帯域)以上複数ゾーン(例えば、中心部、中間部、外周部)に区分して、独立に出力制御を行い、発熱固体の広い領域の均一な加熱と温度分布との制御を行わせるようにすることができる。また、各コイル区分毎に供給ガスの種類、流量等を変化させることもできる。

【0115】図6は本発明の第2の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。この本発明の第2の実施形態は、図3に示す実施形態における高周波コイルに複数種類の供給ガス通路とそのガス吹き出し口を備えて構成したものである。図6において、5-1、5-2はガスの取入口、6-1、6-2はガス通路、7-1、7-2はガスの吹き出し口である。

【0116】図6に示す本発明の第2の実施形態は、同時に2種類のガスをガス取入口5-1、5-2のそれぞれから導入し、ガス通路6-1、6-2を介して吹き出し口7-1、7-2から吹き出させるようにしたものである。この実施形態は、2種類のガスを使用することにより、それぞれのガスを独立の系で反応容器内に導入することができる、(1)ガス種類、濃度を独立に変化させることができる、(2)周辺ガス吹き出し口より不活性ガスを供給することにより、反応生成ガスを急速に排除

することができる、(3)多元系化合物結晶の成長(製造)時に相互に反応しやすい原料ガス(例えば、 $\text{SiH}_4/\text{O}_2$ 等)の分離供給を可能とすることができる、等の多くの応用がかけられるという利点を得ることができる。

【0117】図7は本発明の第2の実施形態の変形例による装置の構成を説明する断面図である。この例は、図1に示す実施形態における高周波コイルの両面に複数種類の供給ガス通路とそのガス吹き出し口を備えて構成したものである。図7における符号は図6の場合と同一である。

【0118】図7に示す装置の機能は、図1～図6により説明した装置と同様であるが、この例装置は、高周波コイル1の裏面のガス吹き出し口に不活性ガスを流すことにより、反応生成ガスの排除、ガス置換、コイル裏面への反応生成ガスの廻り込み防止、生成微粒子によるコイル間の放電防止を行うことができる。また、この例の装置は、高周波コイル1の裏面のガス吹き出し口に対向して発熱固体を配置し、高周波コイル1の裏面のガス吹き出し口から前記固体上に原料ガスを吹き付けるように使用して、原料金属の溶融液を発生させることができる。すなわち、図7に示す例の装置は、コイルの両面で反応を行わせることもできる。

【0119】図8は図1～図7により説明した装置の上面より見たコイル表面に設けられたガス吹き出し口及びガス吹き出し方向の配置例を示す図、図9は図1～図7により説明した装置に用いられる発熱固体の構造及び配置の例を示す図、図10は図1～図7により説明した装置に用いられる高周波コイルのガス吹き出し口の構造及び配置の例を示す図である。

【0120】図8に示す図1～図7の装置における平板状単巻あるいは複数回巻の高周波コイル面のガス吹き出し口7は、ガス吹き出し方向が発熱固体8の発熱表面8-1に対し傾斜角度を付けて設けられている。これは、ガス吹き出し口7を発熱固体8の発熱表面8-1と対向して、コイル面にほぼ直角に設け、対向する固体発熱表面8-1に対してほぼ垂直にガスを吹付けるようにすると、供給ガスと反応生成したガスとが発熱固体表面附近で乱流を起し易くなり、原料ガス供給と反応生成ガスの置換する効率を悪くするからである。前述のようにガス吹き出し口7を、ガス吹き出し方向が発熱固体8の発熱表面8-1に対し傾斜を持たせて設けることにより、供給ガスと反応生成ガスとの速やかな置換と排出とを行うことができる。

【0121】図8に示すガス吹き出し口7に付けられた矢印は、発熱固体の半径方向に対してほぼ直角方向(すなわち、周の接線方向)にガスを吹き出した場合の例を示している。接線方向に吹き出されたガスは、外周方向の速度成分を持っており、発熱固体の回転とともにその回転中心に対し渦巻状に固体表面に沿って反応を行いつ



つ、外周に向って排出される。反応生成ガスも同様の軌跡で外周に向って速かに排出される。ガスの吹き出し方向は、接線方向のみならず、発熱固体の外周方向（外方向）に斜めの角度を持っていてもよい。また、吹き出し位置によって、あるいは、目的により、任意にその方向を選ぶことができる。さらに、そのガスの吹き出し角度は、コイル面あるいは発熱固体表面に対し、目的に応じ、ほぼ直角から、ほぼ平行の範囲で、また、その方向は、吹き出し口と固体回転中心とに対して任意の範囲で選ぶことができる。また、前述の排気が発熱固体周辺

（外周）方向ではなく、逆に、固体周辺より中央部に向って排気が行われる場合、ガス吹き出し方向が前述の接線方向よりその中心部に向かっていてもよい。

【0122】前述したようなガスの吹き出し口構造を有する本発明の実施形態は、回転する発熱固体表面の接線方向あるいは外（内）周方向に、傾斜角度をもってガスを吹き出すことにより、反応生成ガスの急速な置換効果高めると共に、供給ガスの反応面への実質的流速を向上させ、さらに、反応面積及び接触距離を向上させるため成分元素の熔融液折出速度、気体対液体の変換効率（利用効率）を大幅に向上させることができる。

【0123】図9に示す発熱固体8の構造の例を示す図において、8-1は傾斜面、8-2は突起部、8-3は固体支持部、8-1'は熔融液（滴）である。なお、図9（イ）～図9（リ）に示す発熱固体の例は、前述までの実施形態のみならず、後述する本発明の他の実施形態においても使用することができる。

【0124】図9（イ）、（ロ）に示す例は、図1～図7により説明した装置に用いられるコーン状の構造を持つものである。図9（ハ）、（ニ）に示す例は、中央下部に突起を設け、折出熔融液滴8-1'の下降流出を円滑にすることができる構造である。図9（ホ）～（リ）に示す例は、図1～図7に示した発熱固体、高周波コイル、及び、ガス吹き出し口を180度回転（上下逆）して用いた場合の例で、コイル下部にガス吹き出し口を有するコイルの下部に配置して使用され、発熱固体上部で熔融液を発生させるものである。そして、図9（ホ）に示す例は、発生した熔融液滴8-1'を固体周辺の熔融液溜り8-4に集め、重力あるいは回転により、熔融液の飛散落下を行わせるようにしたものである。また、図9（ヘ）～（チ）に示す例は、発生した熔融液を中央部に集め、中央部の孔8-5より熔融液を流出、落下させるようにしたものである。さらに、図9（リ）に示す例は、発熱固体8の上面8-1に折出熔融液を発生させ、これを保持しつつ、熔融液表面にて更に反応を起こさせ、発熱固体8上に結晶成長を行わせるものである。

【0125】図9に示した発熱固体8は、目的により、反応折出熔融液滴の発生面を、反応性の低い材料（例えば、石英やサファイア等）で包んで使用してもよい。

【0126】図1～図7により説明した装置に用いられ

る高周波コイルのガス吹き出し口の構造及び配置の例を示す図10は、複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体20の断面構造及び配置の例をも示している。図10において、1-1は発熱固体あるいは発熱熔融体に対向しているコイル表面あるいは前記金属性導電体障壁表面で、高反射率を有し、高熱伝導性を有する材料、例えば、金、銀等のメッキが施され、鏡面を有している。4は冷却水通路、6は供給ガス通路、6'は溶接部、6-1、6-2は分離された供給ガス通路、7はガス吹き出し口、7-1、7-2は分離された同種あるいは異種の供給ガスの吹き出し口であり、矢印はガスの吹き出し方向の例を示している。なお、図10（イ）～図10（ヌ）に示す例は、前述までの実施形態のみならず、後述する本発明の他の実施形態においても使用することができる。

【0127】図10（イ）に示す例は、平板単巻コイル内に冷却水通路4と共にガス吹き出し口7を有する供給ガス通路6を設けた例、図10（ロ）に示す例は、断面が角形のコイル1あるいは金属性導電障壁20-4内にガス吹き出し口7を有する供給ガス通路6を溶接した例であり、供給ガス通路6を構成するパイプの周囲が冷却水通路4とされている例である。図10（ハ）に示す例は、冷却コイル1とガス通路6の配管とを溶接部6'により隣接して溶接した例、また、図10（ニ）に示す例は、冷却水通路4を持つコイル1の間にガス通路6の配管を溶接部6'により溶接した例であり、ガス通路6配管は溶接部6'を介して高周波コイル1により冷却されている。

【0128】図10（ホ）、（ヘ）、（ト）に示す例は、分離された2本の供給ガス通路6-1、6-2と吹き出し口7-1、7-2を有する高周波コイルの構造及び配置例である。図10（ホ）に示す例は、コイル1の断面を図10（ロ）に比べて横長とし、供給ガス通路を2本並列に設けた例であり、図10（ハ）に示す例は、コイル1を円筒形として装置の内部を冷却水通路とし、コイル1の両側に2本の供給ガス通路を溶接して取り付けした例である。また、図10（ト）に示す例は、コイル1の断面形状を縦長として、その内部に上下両面に吹き出し口を設けて供給ガス通路を2本設けた例である。

【0129】図10（チ）、（リ）に示す例は、はガス吹き出し口7からのガス流量を調節する調整ノズル22を設けた例であり、これらの図において、23はノズル位置調整用ネジ頭部、24はゴムパッキンあるいはオリングである。調整ノズル22は、調整用ネジの円錐状の先端部をガス吹き出し口に連通する穴の入り口に、それらの間のギャップをネジにより調整可能に設けて構成されている。また、図10（ヌ）に示す例は、複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体容器20を構成する区分された金属製障壁20-4の構造及び配置例であり、金属製障壁20-4に冷却水入口4-1、冷却水の出口4-2

が設けられている。そして、金属性導電体障壁表面1-1に近い部分に供給ガス通路6が設けられている。

【0130】図11は本発明の第3の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図11を参照して本発明の第3の実施形態を説明する。この実施形態は、前述までに説明した実施形態と同様な装置に、製造した熔融液滴を固化させる機構を加えた例である。

【0131】図11(a)において、発熱固体8の下部表面8-1で発生した折出熔融液滴8-1'は、底面のほぼ中央部の突起部8-2に集まり、重力により熔融液滴9となって滴下(落下)あるいは下部に流出する。熔融液滴9は、枝別れしたパイプ12'から不活性ガス

(例えば、水素あるいは窒素等)が供給されている金属あるいは石英等の円管内を落下し、支持容器13'内に設けられている石英つぼ13内に集められる。滴下する熔融液滴9は、円筒12の中を通過して落下する間に供給される不活性ガス流により冷却されて固化し、シリコン粒状結晶9'となって石英つぼ13に集められる。

【0132】図11(b)に示す例は、図11(a)に示す例における石英つぼ13の上部に、軸14'により高速に回転させられている回転固体14を設けて構成したものである。落下熔融液滴9は、この高速に回転する回転固体14の表面に衝突し飛散させられるため細粒液滴9''化され、これが冷却固化されて微少粒状結晶9'として石英つぼ13に捕集される。図11(b)に示す例の場合、図11(a)の場合9'より細かい粒状結晶を得ることができる。なお、回転固体14は、回転シャフト14'により回転と位置の移動とを行うことができる。また、回転固体14は、加熱して用いることができる。回転固体は、シリコン、石英、サファイア等により構成される。図11(a)、図11(b)に示す実施形態によれば、微少結晶核を用いることなく、また、装置からの汚染を受けることなく、気体原料から直接高純度な粒状結晶を得ることができる。

【0133】図12は本発明の第4の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図12を参照して本発明の第4の実施形態を説明する。この実施形態は、前述までに説明した実施形態と同様な装置に、製造した熔融液滴を集めて冷却固化させてインゴットを製造する機構を加えた例である。なお、図12には、液滴を受ける部分のみを示しており、熔融液滴を製造する部分の構成は、図11の場合と同一でよい。

【0134】図12において、図示しない熔融液滴の製造装置から落下する熔融液滴9は、供給原料として、加熱保持された石英つぼ13内に供給されて冷却固化され、多結晶インゴットに製造される。石英つぼ13は、一般にはカーボンつぼ内に設置されており外部加熱装置15により加熱されている。石英つぼ13内には、熔融液滴9が供給されてシリコン熔融液16と、固化したシリコン多結晶18'とが形成される。すなわち、図1

2に示す実施形態は、シリコン熔融液滴9を石英つぼ13内の熔融液16に連続して供給しつつ、下部より冷却固化して多結晶インゴットを製造することができる。

【0135】通常、多結晶片を熔融すると熔融液は、石英つぼの半分程度にその体積が減少するため、粒状結晶を熔融してインゴットを製造する場合、途中で追加原料として粒状結晶を加えなければならず、また、粒状結晶が溶解しにくく、熔融液温度を通常の熔融温度より50℃～100℃高くする必要がある、さらに、多くの時間がかかり、製造効率が悪くなった。しかし、図12に示す本発明の実施形態は、供給原料となる熔融液滴9が直ちに熔融液16に溶解するため、供給原料の円滑な連続供給を行うことができ、また、装置を小形化することができ、石英つぼ一杯に使うことができ極めて効率良く多結晶インゴットの製造を行うことができる。

【0136】図13は本発明の第5の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図13を参照して本発明の第5の実施形態を説明する。この実施形態は、前述までに説明した実施形態と同様な装置に、製造した熔融液滴を集めてシリコン熔融液とし、シリコン熔融液より原料を供給しつつ引上げ法によって単結晶成長を行いシリコン単結晶を製造する機構を加えた例である。なお、図13には、液滴を受ける部分のみを示しており、熔融液滴を製造する部分の構成は、図11の場合と同一でよい。

【0137】図13において、図示しない熔融液滴の製造装置から落下する熔融液滴9は、供給原料として、石英製の円筒形の障壁19内を通過して加熱装置15により加熱された石英つぼ13内に供給され、石英つぼ13内にシリコン熔融液を形成する。石英製の円筒形をした障壁19は、液滴9が熔融液16の表面で飛散するのを防止する目的で設置されている。そして、シリコン熔融液16から種子結晶17を使用して連続単結晶引上げを行い、これにより、成長単結晶18が製造される。

【0138】通常連続引上げを行う場合、供給原料として、粒状結晶あるいは多結晶インゴットが用いられている。粒状結晶を用いる方法は、液面での飛散が激しく成長結晶の多結晶化を起し易く、また、溶解しにくいため速かに粒状結晶を溶解させるために通常の熔融温度より局部的に+50℃～+100℃の高温が必要であり実用化には至っていない。

【0139】また、多結晶インゴットを用いる方法は、多結晶インゴットを直接熔融液面に挿入しても同一の石英つぼ内で大きな温度勾配をとることができず、その実施が極めて困難である。また、多結晶インゴットの先端部を熔融して、熔融液滴を供給する方法が行われているが、この方法は、大形の加熱装置と大形(長尺)の多結晶インゴット保持装置とを必要とするため、装置が大型となり、また、別途多結晶インゴットを原料ガスから作る必要がある等の欠点を有している。

【0140】図13により説明した本発明の第5の実施形態は、前述の方法に比較して、原料ガスから直接発生する熔融液滴を固化することなく直接供給するため、極めて円滑に原料を熔融液として連続供給することができ、装置の小形化、省エネルギー化を計ることができる等多くの効果を有する。

【0141】図14は本発明の第6の実施形態による装置、及び、その変形例の構成を説明する断面図であり、以下、図14を参照して本発明の第6の実施形態を説明する。この第6の実施形態は、固体結晶（多結晶あるいは単結晶）上に加熱熔融帯を保持しつつ、浮遊帯法によって結晶成長を行わせるものである。

【0142】図14（a）、図14（b）において、シリコン液滴9を製造する部分の構成は、前述までに説明したものと同一でよい。そして、この実施形態は、発熱固体8の表面8-1で発生した熔融液原料8-1'を発熱固体8の低部より滴下あるいは下降流出させて回転している種子結晶17上のシリコン熔融液16に供給しながらシリコン単結晶18を成長させることによりシリコン単結晶を製造するものである。なお、原料ガス吹出口を有する高周波コイル1は、発熱固体8及び熔融液帯16の両者を同時に加熱している。

【0143】図14（a）に示す例で用いられる発熱固体8は、図9（イ）～図9（ハ）に示した形状のものを使用することができ、また、図14（b）に示す例で用いられる発熱固体8は、図9（ニ）に示した形状のものをを使用した例である。図14（b）に示す例の場合、発熱固体8の表面8-1で発生した熔融液8-1'は、発熱固体中央部の下部突起棒の表面に沿って下降流出し、その先端部8-2に到る。先端部8-2は、熔融液帯に接触（浸漬）しているため熔融液8-1'は円滑に熔融液帯16に供給される。また、図14（b）に示される装置は、発熱固体8の回転中心線と成長結晶18の回転中心線との間が距離1だけ偏芯させられており、これにより、均一な原料供給と結晶品質の向上とを図ることができる。

【0144】通常、浮遊帯法を用いて単結晶を成長させる場合、供給原料として、多結晶インゴットが用いられているが、原料となる多結晶インゴットを熱分解によって原料ガスから作る工程、外形工程、エッチング工程を必要とし、このため、結晶成長中に多結晶インゴットの加熱熔融用電力（総電力の約40%以上）を必要とし電力損失が大きなものとなる。また、大形（長尺）の多結晶保持装置を必要とするため装置が大型となる等の欠点を有している。

【0145】前述した図14に示す本発明の第6の実施形態は、前述の方法に比較して、原料ガスから熔融原料液を発生しつつ、これを連続して供給するため、工程も短く、また、大型の原料多結晶を必要としないため、装置の小形化、省エネルギー化を図ることができ、単結晶

製造の大幅なコストダウンを図ることができる等の多くの効果を有する。

【0146】図15は本発明の第7の実施形態による装置、及び、その変形例の構成を説明する断面図であり、以下、図15を参照して本発明の第7の実施形態を説明する。この第7の実施形態は、図14の場合と同様に、固体結晶（多結晶あるいは単結晶）上に加熱熔融帯を保持しつつ、浮遊帯法によって結晶成長を行わせるものである。

【0147】図15（a）に示す例は、固体結晶（多結晶あるいは単結晶）上に、第2の高周波コイル1'を配置して、固体結晶18上に加熱熔融帯16を保持させ、図示していない上部の発熱固体8の低部より滴下あるいは下降流出する熔融液滴9を前記熔融液16の表面に供給しながら連続して結晶成長を行わせている。また、図15（b）に示す例は、滴下する原料液滴の飛散防止の為に絶縁性固体（例えば、石英やサファイア等）で作られた障壁筒19を配置した例である。滴下された液滴9は、障壁筒19の底部に備けられた孔19-1を通して、保持された熔融帯16に連続して供給される。

【0148】前述した図15（a）、図15（b）に示す例は、第1のガス吹出し口を有する高周波コイル1とは別に第2の高周波コイル1'を備えることにより、熔融液滴の発生と結晶成長の条件とを独立に制御することが容易となり、また、熔融液滴を発生させる第1の高周波コイル付近で発生する残留原料ガスの影響を少なくし、障壁筒の取付、交換を容易にする等の多くの効果を得ることができるものである。さらに、この例は、第2の高周波コイル1'にもガス吹出し口を設けて構成することもできる。

【0149】図16は本発明の第8の実施形態による装置、及び、その変形例の構成を説明する断面図であり、以下、図16を参照して本発明の第8の実施形態を説明する。この第8の実施形態は、浮遊帯法によって単結晶成長を行うために、上部の発熱固体の低部より滴下あるいは下降流出する熔融液をシリコン種子単結晶先端に供給しつつ種子付けを行って連続して単結晶成長を行わせるものである。

【0150】図16（a）に示す例において、原料ガス吹出し口を有する高周波コイル1が発熱固体8及び種子付部の熔融帯16の両者を同時加熱している。そして、発熱固体8の表面に形成されたシリコン熔融液は、シリコン種子結晶（単結晶）17の先端部に供給されて単結晶成長させられる。シリコン種子結晶17は、通常、直径3mm～10mm、長さ40mm～100mmの寸法を有している。種子付後、単結晶中の結晶欠陥（転位）をなくす無転位化成長（Dislocation Free化）を行うため、シリコン種子結晶（単結晶）17の先端部に成長する結晶は、一旦その直径が3mmΦ～5mmΦ、長さ30mm～50mmに絞られ、その後、結晶直径を上げ

る操作（結晶成長）が行われる。一定の直径に成長した単結晶18上には、図14、図15に示したと同様に熔融液帯16が保持され、上部発熱固体表面上に生成した熔融液原料8-1'が熔融液帯16に供給されて単結晶製造が行われる。

【0151】図16(b)及び図16(c)に示す例は、上部の発熱固体8の低部より滴下する熔融液滴9あるいは下降流出する熔融液8-1'を、底部に少なくとも1個以上の孔19-1を有する障壁囲い（筒）19内に受け、前記障壁底部孔19-1を介して種子付け工程を行う例である。高周波コイルは、原料ガス吹出し口を有する高周波コイル1あるいは第2の高周波コイル1'の何れでもよく、供給原料溜り16-2と種子結晶17の先端部とを加熱している。原料溜り16-2は、障壁囲い底部の孔19-1を介して種子結晶17の先端部と接する領域16を形成し、安定した種子付けが行われる。その後、種子結晶を回転下降させて、前述したと同様に、原料供給を行いながら成長結晶の直径を拡張しつつ結晶成長が行われる。

【0152】従来の浮遊帯法で行なわれている種子付法は、外周加工された大形の原料インゴットの先端（下端）部を細く加工し、その先端部を誘導加熱して、表面張力によって融滴部を保持しつつ、これに種子結晶を接触して種子付けを行っている。これに対して、前述した本発明の実施形態は、原料多結晶棒を全く用いず、原料ガスより折出した熔融液滴を直接用いることができ、効率的にシリコン単結晶を製造することができる。

【0153】図17は図15(b)及び図16(b)、図16(c)により説明した例で用いられた絶縁体障壁円筒19の形状例の幾つかを示す図であり、以下、これらについて説明する。

【0154】図17(i)に示す例は、絶縁体障壁円筒19を円筒状の底なしの形状とした例、図17(ロ)に示す例は、底面を有し、底面に少なくとも2個の貫通した孔19-1を有する例である。図17(ハ)に示す例は、底面に1個の孔を有し、これに向かって底面が傾斜をする形状を持つ例、図17(ニ)に示す例は、底面を有せず円筒の底部外周にそって同芯円板19-2を配置した例である。さらに、図17(ホ)に示す例は、図17(ハ)、図17(ニ)に示す例を組み合わせた形状を持つ例である。前述において、障壁円筒19は、熔融液16と障壁筒内の熔融液16-2とが、開いた底部あるいは孔19-1を介して連続するように位置させて使用される。

【0155】前述したような障壁円筒19を使用することにより、発熱固体から滴下する熔融液滴が結晶上あるいははつぽ内に保持された熔融液面に衝突して、液滴が飛散して容器壁や固液界面に附着して多結晶核を発生させ、あるいは、外部に飛出すようなことを防止することができる。また、障壁円筒19を備えることにより、円

滑な原料供給と、飛散による事故を防止することができる。底部に設けられた孔を、図16(b)により説明したように種子付に用いることができる。

【0156】図17(二)に示した例は、同芯円板19-2を有しており、同芯円板19-2を熔融液面に接して配置することにより、液面の振動防止、添加不純物の蒸発を抑えることができると共に、材質を選ぶことにより、例えば、石英等の場合、酸素供給源として用いることができる。また、図17(ホ)に示した例は、上述した液滴の飛散防止、種子付、不純物添加を同時に行うことができる。

【0157】図18は本発明の第9～第11の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図18を参照して本発明の第9～第11の実施形態を説明する。本発明の第9～第11の実施形態は、発熱固体8の上面8-1に、コイル1に設けられたガス吹出口より、原料ガスを吹付け、前記発熱固体の上面8-1に熔融原料液（滴）8-1'を発生させ、あるいは、前記発熱固体の上面8-1に熔融原料液帯16を保持しつつこれに原料ガスを吹付けて結晶成長を行わせるものである。

【0158】図18(a)に示す本発明第9の実施形態は、コイル1の下に設けた図9(ホ)に示した傘形形状を有する発熱固体8を回転して、遠心力により熔融液滴9を飛散、冷却させることにより粒状結晶を製造する実施形態である。

【0159】図18(b)に示す本発明の第10の実施形態は、図9(ヘ)～図9(チ)により説明した漏斗状の形状を有する発熱固体8を用いて、発熱固体8の中央部に生成熔融液を集め、中央部に設けられた孔8-5より下方に熔融液を滴下させて熔融液滴9を発生させ、そのまま落下冷却して粒状結晶を製造する実施形態である。

【0160】図18(b)に示す本発明の第10の実施形態により生成された原料熔融液滴9は、加熱された図示しない石英容器内の熔融液16に直接供給して、この熔融液16の表面より、引上法により単結晶を製造するために使用することができる。また、この原料熔融液滴9は、図15(a)、図16(b)により説明したように、第2の高周波コイルを用いて、発熱固体上部に保持された浮遊帯域16に供給することもでき、これにより、浮遊帯法により単結晶インゴットを製造することができる。

【0161】図18(c)に示す本発明の第11の実施形態は、図9(リ)により説明した形状を持つ発熱固体18を用い、発熱固体18の上面に原料熔融液を滴下して熔融液帯（浮遊帯）16を形成し、かつ、浮遊帯表面に原料ガスを吹付けて、原料熔融液を発生させながら、浮遊帯法により単結晶成長を行う実施形態である。

【0162】前述した本発明の第9の実施形態は、発熱固体の上部に原料ガスを吹付けて原料となる熔融液滴を

発生させ、この熔融液滴を回転飛散させて粒状結晶を製造することができ、第10の実施形態は、熔融液滴を石英のつば内に供給して連続引上法により単結晶を製造することができる。また、第11の実施形態は、熔融液滴を発熱固体上部に保持された熔融帯に供給して、原料多結晶棒を用いることなく浮遊帯法により単結晶を製造することができ、かつ、発熱固体上部に形成保持されている熔融液帯に原料ガスを供給しつつ、原料多結晶棒を用いることなく、浮遊帯法による単結晶製造を行うことができる。第9～第10の実施形態によれば、前述により、より簡単で小型な構造の装置で、大形の単結晶を製造することができる。

【0163】図19は本発明の第12の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図19を参照して本発明の第12の実施形態を説明する。本発明の第12の実施形態は、コイルの両面にガス吹出し口を有する高周波コイル1の上部に発熱固体8を配置し、下部に発熱固体（単結晶または多結晶）18を配置して構成した実施形態である。

【0164】図19に示す本発明の第12の実施形態において、原料ガスは、上部の発熱固体8の下面8-1にガス吹出し口7-1より吹付けられ、析出熔融液滴8-1'を発生させる。この熔融液滴8-1'は、重力により発熱固体の下部先端8-2を通過して、下部に配置した発熱固体18の上部に保持された熔融液帯に供給される。発熱固体18の上部は、同時に高周波コイル1によって加熱されており、この表面に向かって原料ガスがガス吹出し口7-2より吹付けられ析出熔融液帯を形成する。

【0165】すなわち、この実施形態は、上部の発熱固体8からの原料熔融液を下部の発熱固体18の上部に浮遊液帯として保持しつつ、さらに、原料ガスを吹付けて熔融液を発生させるものであり、上部の発熱固体8の下部と、下部の発熱固体18の上部に形成された熔融液帯16の両方で、同時に原料熔融液の発生と供給を行うものである。そして、この実施形態は、熔融液帯の量の増加に従って、下部固体を回転しつつ下方に移動することにより、下部固体に大型、長尺のインゴットを析出速度を大巾に向上して形成することができる。

【0166】なお、供給するガスは、条件により、例えば、結晶成長の初期に図16(a)により説明したように種子付けを行う場合、上部ガス吹出し口7-1より原料ガスを、下部ガス吹出し口7-2より不活性ガスを供給してもよい。また、発熱固体18としての成長結晶と熔融液16との固液界面（外周部）への結晶の異状析出を防止するために、上部ガス吹出し口7-1より原料ガスを、下部ガス吹出し口7-2より不活性ガスを供給してもよい。

【0167】図20は本発明の第13の実施形態による装置、及び、その変形例の構成を説明する断面図であ

り、以下、図20を参照して本発明の第13の実施形態を説明する。図20に示す実施形態は、コイルのなす断面構造が漏斗状あるいは曲面（容器）状をなし、その内面に沿って原料ガスあるいは不活性ガスのガス吹出口7が配置された高周波コイル1を用いて、その内面側に原料浮遊熔融液体16'を配置（保持）する実施形態である。なお、図20において、2-1、2-2は高周波コイルの電極、5はガスの導入パイプである。

【0168】図20(a)に示す実施形態において、前記原料浮遊熔融液体16'は、ガス吹出しによる浮揚力、及び、高周波コイルと熔融体との間に発生する電磁誘導反発力による浮揚力（レビテーション効果）により、空中に安定して浮遊保持されている。そして、この例は、熔融体16'に原料ガスを供給することにより、熔融体16'の量を増加させていくものである。

【0169】従来の電磁誘導法は、初期の原料金属を溶解する段階で、固体金属がコイル1の低部に折衝するため放電を起し易く、また、汚染され易く、さらに、溶解初期にはコイルに接触することによる冷却を受け底部が溶解しにくい等の問題があった。

【0170】図20(a)に示す本発明の実施形態は、初期段階から初期種子金属（あるいは合金、化合物）を、ガス吹出し口からの、例えば、不活性ガスによる強力な浮揚力と求心力とによって空中に安定保持させることができるため、非接触で、放電も生じさせることなく、かつ、速やかに溶解することができ、同時に原料ガス供給によって増加する大量の熔融液体を安定に保持して高純度の金属の製造を行うことができる等多くの利点を有する。また、この例は、より安定化のためにコイル上部にカウンター用コイルを配置することもできる。

【0171】図20(b)に示す本発明の第13の実施形態の変形例は、前述した空中に保持された浮遊熔融液体16'に種子結晶あるいは固体結晶（支持体）17'を接続し、熔融体16'に不活性ガスあるいは原料ガスの供給を行いつつ、前記熔融体より結晶成長を行う装置の構成例である。浮遊する熔融液16'の位置は、高周波電流変動やガス吹出し圧力によって変動（振動）し易いが、図20(b)に示す例は、浮遊熔融体16'に種子結晶あるいは固体結晶17'を接続することにより、固液界面での表面張力を利用してこれをより安定化させ、固液界面から結晶成長を行わせることができる。

【0172】なお、図20(b)に示した例は、浮遊熔融体16'の上方に固体結晶17'を接続して上方に引上げる例であるが、固体結晶17'を熔融体16'の下部に接続して下方に引下げてもよい。

【0173】図21は本発明の第14の実施形態による装置、及び、その変形例の構成を説明する断面図であり、以下、図21を参照して本発明の第14の実施形態を説明する。

【0174】図21(a)に示す第14の実施形態は、



ガス吹出し口7を有する高周波コイル1の上部に発熱固体8を保持し、その下部を前記高周波コイルにより加熱しつつ原料成分ガスを吹付け、発生する折出溶液液滴9を、前記コイルの下部に配置された発熱固体(結晶)18の上部原料溶液16に供給し結晶成長を行わせるものである。下部に配置される発熱固体18上の溶液16は、高周波電流の変動や、滴下溶液の衝撃あるいは外部の機械振動等による振動を受け、固体ロット上より流れ落ち易くなる。図21(a)に示す例は、この溶液の流れ落ち(落下)を防止するため、前記溶液液帯を取り囲んで複数の絶縁縦溝(絶縁縦溝の低部を20-1で示す)を有する水冷された金属性外障壁20を配置して装置を構成した例である。

【0175】そして、この例は、前述の絶縁縦溝に挟まれた金属性導電体内に局部誘導電界を発生させて、同時に溶液液帯表面に発生する誘導電界との相互作用による電磁気圧によって外障壁内面と非接触状態で溶液16を安定に保持することができるようにされており、発熱固体18とその支持体21とを回転下降させることにより安定な結晶成長を行うことができる。

【0176】図21(b)に示す変形例は、ガス吹出し口7を有する高周波コイル1の下部に発熱固体8を保持し、その上部を前記高周波コイルにより加熱しつつ原料成分ガスを吹付け、発生する折出溶液液帯16を前記固体上部に保持し、さらに、原料成分ガスを供給しつつ結晶成長を行わせるものである。そして、この例においても、図21(a)に示した実施形態の場合と同様に、溶液の流れ落ち(落下)を防止するため、前記溶液液帯を取り囲んで複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性外障壁20を配置している。従って、この例においても、外障壁20と溶液16との間に発生する電磁気圧によって、溶液液帯16を非接触状態で安定に保持することができ、安定な結晶成長を行わせることができる。

【0177】図22は本発明の第15の実施形態による装置、及び、その変形例の構成を説明する断面図であり、以下、図22を参照して本発明の第15の実施形態を説明する。

【0178】図22(a)、図22(b)に示す本発明の第15の実施形態、及び、その変形例は、図21(a)、図21(b)に示した第14の実施形態、及び、その変形例で用いられた溶液液帯を取囲んで複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性外障壁を配置し、前記絶縁縦溝に挟まれた金属性導電体内面に少なくとも1個以上、少なくとも1種類以上のガス(例えば、不活性ガス、反応性ガスあるいは原料成分ガス等)吹出し口7'-1、7'-2を配置して構成したものである。なお、図22において、5'-1、5'-2は前記ガス吹出し口に対応したガス導入パイプである。

【0179】図22(a)、図22(b)に示す実施形態は、前記金属性外障壁内面にガス吹出し口を配置して

ガスの供給を行うことにより、電気的あるいは機械的振動による溶液液の流れ落ちや外障壁との接近による局部的結晶核(多結晶化核)の発生を防止して溶液液帯を安定に保持することができ、また、不活性ガス供給により、反応ガスや反応生成ガスが発熱固体18の表面に拡散して、ガス置換を確実に行うことができるので、その表面に結晶が折出(多結晶化)することを防止することができる。さらに、この実施形態は、原料ガスの供給により、溶液液帯表面での溶液液折出を行うことができる等の多くの効果を得ることができる。

【0180】図23は本発明の第16、第17の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図23を参照して本発明の第16、第17の実施形態を説明する。

【0181】図23(a)に示す第16の実施形態は、複数の絶縁縦溝20-3とガス吹出し口7'-1とを有する水冷された金属性導電体によって構成される障壁囲い20と底面20-2とによって、原料溶液16を保持し、前記障壁囲い20の上端部近傍と前記溶液16の水平表面に直接対向して平面状高周波コイル1を配置し、上部の発熱固体8の下部表面から発生する原料溶液液滴9を原料溶液16に供給しながら平板状結晶の製造を行うものである。

【0182】この第16の実施形態は、高周波コイル1により加熱された上部の発熱固体8の表面に、ガス吹出し口7より原料ガスを吹付けて、原料溶液8-1'を発生させ、原料溶液を中央下部突起より溶液液滴9として金属性導電体障壁囲い20の中央部にうけられた平面底を有するポケット20-2に供給し、円板状の溶液液帯16を形成するように構成されている。溶液液帯16は、高周波コイル1によって加熱され、また、金属性導電体と溶液液の間に発生する局部的電磁気圧によって非接触に保持される。また、金属性導電体障壁20及びポケット20-2は、その支持台(冷却水の取入、排水口は省略)によって高速回転させられ、これによる遠心力により溶液16が薄い円板状に拡げられる。この状態から溶液16の温度を下げ、固化せしめることにより薄い円板状の結晶体(ウェハ)を取出すことができる。ウェハの温度を下げる方法は、例えば、高周波コイルの電流を下げる方法でもよく、また、金属性導電体20及び20-1を下方に下げて、高周波コイル1との距離を離す方法によってもよい。

【0183】前述の実施形態は、金属性導電体20と溶液16とを電磁気圧のみによって非接触に保持する場合、その間隙が小さく、高周波電流の変動や機械的振動によってその間隙が変動し、水冷された金属性導電体からの局部的冷却を受け易くなり、また、金属性導電体と溶液液との間の温度勾配が大きい場合溶液液が冷却され易く、多大な加熱用電力が必要となる。

【0184】図示第16の実施形態は、前述の問題点を



解決するために、絶縁縦溝間の水冷された金属性導電体にガス吹出し口7'あるいは7'-1を配置し、前記ポケット部のガス吹出し口7'-1より不活性ガスを流して熔融液16を浮揚させて断熱効果を高めている。また、ポケット周辺（外障壁）のガス吹出し口7'より不活性ガスあるいは原料成分ガスを流して熔融液16の外周部とポケット外障壁との間隙を広げることにより、熔融液16を一定距離に保ちつつ平板状に安定に保持することができる。

【0185】また、第16の実施形態は、高温で固化したウェハの取出しの際に、不活性ガスの吹付けにより、速やかにこれを冷却することができる。第16の実施形態は、ガス吹出し口を有する外障壁部20と中央ポケット部20-2とを独立に構成しているが、本発明は、これ等を一体化したガス吹出し口を有する皿型の金属性導電体を用いてもよい。また、第16の実施形態は、前記障壁囲い20の上端部近傍と前記熔融液16の水平表面とに直接対向して平面状高周波コイル1が配置されているので、高周波電力による熔融液の誘導加熱の効率を向上させることができ、かつ、誘導電流の表皮効果によって熔融液表面全体に均一な加熱を行うことができる。また、第16の実施形態は、固化した結晶上に浮遊帯を保持して結晶成長を行わせる場合、固液界面の平坦性を良くし、結晶品質の向上を図ることができ、前記ポケット部の形状を円形、四角形あるいは多角形等を選ぶことによって任意の形状のウェハを製造することができる。

【0186】図23(a)に示す本発明の第16の実施形態は、原料熔融液滴（液体）9の供給源として、原料ガス（気体）を用いたが、熔融液滴の供給源として、ガス吹出し口7'から原料となる成分元素を含むガスを熔融液16の表面に供給してもよく、また、通常が多結晶シリコン棒を用いてその下端部を高周波コイル1によって溶解し、これを滴下せしめてもよい。また、固体原料として、粒状結晶を前記ポケット内に供給し、高周波加熱によって溶解して前記熔融液16を形成することもできる。すなわち、供給する原料は、気体（気相）、液体（液相）あるいは固体（固相）の何れの形態でも使用することができる。

【0187】前述した本発明の第16の実施形態は、前述したように、複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性導電体にガス吹出し口を設けることにより、以下に述べるような多くの効果を得ることができる。

【0188】（1）熔融液を浮揚させて保持することができる。

（2）電氣的、機械的振動による局部的冷却を受けにくい。

（3）熔融液と金属性導電体との間に不活性ガス層が存在するため、温度勾配が少なくなり、断熱効果を高め、熔融液温度を安定化させることができ、加熱用電力を減

少させ省エネルギー化を図ることができる

（4）高周波電源が切られてもガス圧によって熔融液あるいは固化したウェハが金属性導電体と接触することがなく、汚染を防止することができる。

（5）固化した高温の結晶ウェハを不活性ガスによって急速冷却することができ、生産性の向上を図ることができる。

（6）直接ウェハを製造することができるため、インゴットからのウェハの切出時に生ずる原料の加工ロスを減少することができ、コストダウンを図ることができる。

（7）供給する原料の状態が気体（気相）、液体（液相）あるいは固体（固相）の何れであってもよい。

（8）平面状高周波コイルが熔融帯表面に隣接しているため、平面状熔融体を均一に効率よく加熱することができ、また、固液界面を平坦化することができ、結晶品質の向上を図ることができる。

【0189】図23(b)に示す本発明の第17の実施形態は、複数の絶縁縦溝20-3を有する水冷された金属性導電体20の前記絶縁縦溝によって区分された金属性導電体20-4に、ガス吹出し口7'及び7'-1を設け、金属性導電体20の内側に熔融液16を生成させ、その外側に高周波コイル1"を配置した構成を持つ実施形態である。熔融液16は、高周波コイルにより加熱されると共に、ガスの圧力及び金属性導電体20-4との間に発生する電磁気力によって浮揚させられ、金属性導電体20に接触することなく溶解保持されている。

【0190】そして、第17の実施形態は、金属性導電体20の内側の形状にるつぼ型（容器型）外障壁を用い、底部に結晶18とその支持台21を配置し、ガス吹出口7'（ガス取入口5'-1）及び7'-1（ガス取入口5'-2）より不活性ガスを供給し、溶解液16の上部より、図23(a)で説明した場合と同様に発熱固体8の下部に原料成分ガスを吹付けて発生させた原料熔融液滴9を供給しつつ、前記支持台21を下降させて、前記結晶18上に結晶を成長させていく。

【0191】供給原料は、熔融液滴のみならず粒状あるいは棒状結晶であってもよく、また、前記ガス吹出し口7'より原料ガスを、7'-1より不活性ガスを供給して熔融原料液の折出（原料供給）によってもよい。また、金属性導電体20の内側の形状は、円筒型外障壁を用いて、底部に結晶18を配置したもの（後述する図26参照）でもよい。

【0192】図23(b)に示す本発明の第17の実施形態は、数kg r～数10kg rの熔融液を浮揚し保持することができる。また、結晶成長は、下部方向へのみでなく、前記金属性導電体20をるつぼとして熔融液上部表面より通常の引上法と同様に行うこともできる。さらに、この実施形態は、底部に孔のあいた石英るつぼあるいは石英円筒を熔融液内に設置（二重るつぼ構造）して、前記金属性導電体と前記孔あき石英るつぼの外側と

の間に例えば粒状結晶を供給し、前記石英るつぼの内側より単結晶を引上げることににより、酸素ドーピングを行いながら、連続して結晶成長を行うことができる。

【0193】従来のコールド・クルーシブル（Cold Crucible Melting）法は、高周波電力が供給されたときのみ、電磁気力により、熔融液と金属性導電体との非接触が保たれ、熔融液が局所的な冷却を受け易く、熔融液の安定保持が困難であったが、前述した実施形態は、これらの問題点を解決することができる。すなわち、第17の実施形態は、前記絶縁縦溝20-3の間の水冷された金属性導電体域20-4にガス吹出し口7'あるいは7'-1を配置し、前記るつぼ状金属性導電体に配置されたガス吹出し口7'及び7'-1より原料成分ガスあるいは不活性ガスを流しているため、熔融液16を安定に浮揚させ、断熱効果をも高めることができる。

【0194】また、前述した本発明の第17の実施形態は、底部のガス吹出し口7'-1より酸化性のガス、例えば、 $H_2O$ 、 $CO_2$ 等のガスを熔融液16に吹込み、原料熔融液の純度精製を行うこともできる。

【0195】前述した本発明の第17の実施形態は、絶縁縦溝によって区分された金属性導電体20-4にガス吹出し口を設け、金属性導電体によって構成される容器20の外側に高周波コイル1''を配置することにより以下に述べるような多くの効果を得ることができる。

【0196】（1）大量の熔融液を安定に浮揚保持することができる。

（2）電氣的、機械的振動による局所的冷却を受けにくい。

（3）熔融液と金属性導電体との間にガス層が存在するため、断熱効果が高く熔融液温度を安定化することができる。

（4）高周波電源が切られても、ガス圧によって、熔融液あるいは初期固体原料が浮揚力を受け、金属性導電体と接触することがなく、汚染を防止することができる。

（5）原料熔融液16に、金属性導電体20-4に設けられたガス吹出し口7'または7''-1から直接原料成分ガスを吹付けあるいはバブル状に吹込んで、連続熔融液の供給を行うことができる。

（6）結晶成長を金属性導電体20の底部に配置された固体結晶上のみでなく、熔融液16の上部表面より通常の引上法により行うことができ、石英るつぼを不要とすることができる。

（7）供給する原料の状態が気体（気相）、液体（液相）あるいは固体（固相）の何れであってもよい。

（8）酸化性ガスを吹込むことにより原料純度精製を行うことができる。

【0197】図24は本発明の第18の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図24を参照して本発明の第18の実施形態を説明する。本発明の第18の実施形態は、本発明を、従来のコールド・ボー

ト（Cold Boat）法に適用した例である。

【0198】図24に示す本発明の第18の実施形態は、複数の絶縁縦溝20-3によって区分され、水冷された金属性導電体20-4の内面にガス吹出し口7'-1を設け、前記金属性導電体20-4によってボート形状を構成し、その内側に熔融液16を浮揚保持させて、これに原料成分ガスを供給して原料熔融液を連続供給しながら、帯域熔融法（Zone Leveling Method）や浮揚帯域精製法（Levitation Zone Refining Method）により、結晶成長あるいは結晶精製を行うものである。

【0199】図24において、A-A'は金属性導電体20-4によって構成される円筒部の下部ボート部と分離可能な上部天蓋部との組合わせ位置を示している。26は石英管であり不活性ガスが流されている。この石英管26は場合により除いても良い。1''は前記導電体20-4と石英の外周とに配置された高周波コイル、3-1、3-2はコイルの電極ならびに冷却水の入出口を示している。下部ボート部を構成する金属性導電体棒20-4は、その両端部で半月形の金属性導電体ブロックに接続固定されている。また、前記ブロックの両端に接続された冷却水の取入、取出口を20'-1で示し、同じくガス取入口を5'-1、ガス配管を6'-1、ガス吹出し口を7'-1で示し、上部天蓋部も同様にブロックの両端に接続された冷却水の取入、取出口を20'-2で示し、ガス取入口を5'-2、ガス配管を6'-2、ガス吹出し口を7'-2で示している。

【0200】そして、半月形金属性導電体ブロック及び金属性導電体棒20-4には、銀、金あるいは銅の表面に金、銀のメッキをした金属材料が用いられる。下部ボート部には原料（固体）を配置し、これをガス吹出し口7'-1からの不活性ガス圧力によって浮揚保持し、次に外部コイルより高周波誘導加熱を行い前記固体原料を熔融し熔融液16を形成する。このとき、熔融液16は、電磁気圧とガス圧とによって非接触に安定保持される。

【0201】この本発明の実施形態は、前述したように熔融液16を保持しながら、上部天蓋部に設けられたガス吹出し口7'-2より原料ガス（例えば、モノシラン、三塩化シラン等）を供給し、あるいは、下部ボートのガス吹出し口7'-1より原料ガスをバブルさせながら供給してもよい。供給された原料ガスは、熔融液16の表面で反応（分解あるいは還元）して原料成分（例えばシリコン）を生成し、同時に熔融液中に溶解する。すなわち、この実施形態も、ガス（気相）の供給により熔融液原料の供給ができる。

【0202】そして、この本発明の第18の実施形態は、熔融液16と高周波コイル1''とを相対的に移動させて、熔融液16を端部より結晶化（固化）せしめて結晶成長あるいは帯域熔融法により結晶精製を行うことができる。また、この例は、垂直に立てることにより、図

23 (b) により説明した実施形態と同様な効果を得ることができる。

【0203】前述したように、本発明の第18の実施形態は、絶縁溝によって区分された金属性導電体(棒)20-4にガス吹出し口を設けることによって、効率のよい気相からの原料供給、大量の熔融液を完全な非接触で浮揚保持することができる等の効果を得ることができ、安定した浮揚帯法により結晶成長あるいは結晶(金属)の精製を行うことができる。

【0204】図25は本発明の第19、第20の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図25を参照して本発明の第19、第20の実施形態を説明する。

【0205】シリコン原料熔融液の製造は、発熱固体表面あるいは熔融液表面における供給原料ガスの反応効率、反応速度及び反応の選択性が要求される。本発明の第19、第20の実施形態は、反応効率、反応速度の向上を図ることを可能としたものである。すなわち、本発明の第19、第20の実施形態は、光(紫外線あるいは遠赤外線等)の照射によって、反応ガスを熔融液表面において励起分解し、ラジカル等の活性中間体(前駆体)を発生させて、熱分解等の反応を促進し、熔融液の折出速度を向上させるものである。また、これらの実施形態は、照射光の波長を選択することにより、特定の反応を起こさせることができる。

【0206】そして、発熱固体あるいは熔融液の表面に、前記励起光を照射するためには、前記表面上に励起用光源装置を設置する必要があるが、前述した本発明の各実施形態は、高温に保持された表面と、加熱源となる高周波コイルあるいは複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性導電体(コールド・クルーシブル)との間隙が小さく、前記表面上に励起用光源装置を設置することが極めて困難である。

【0207】本発明の第19、第20の実施形態は、折出原料の融点以上に保持された、前記加熱固体あるいは熔融液に前記高周波コイル面を貫通して光導体を設置し低温初期加熱光(赤外線)や励起光(紫外線)を照射することによってその目的を達成するものである。これらの実施形態は、励起光が、高反射率を有するコイル面によって閉じ込められるため、外部への散乱による損失が小さくなるばかりでなく、装置を極めて小形化することができる等の利点を有している。

【0208】図25(a)に示す本発明の第19の実施形態は、コイル1の上に配置される発熱固体8の表面8-1に対向して、高周波コイル面を貫通する光導体(サファイア、石英等)27-1を設け、励起用光源装置29からの励起光を光導管(ファイバー)28を経て、前記光導体27-1の先端27-2より前記固体表面8-1に照射するように構成されている。また、図25

(b)に示す本発明の第20の実施形態は、コイル1の

下に配置される発熱固体18上に形成される熔融体16の表面に対向して、前記高周波コイル面を貫通して光導体27-1を設け、励起用光源装置29からの励起光を光導管28を経て、前記光導体の先端27-2より前記熔融体表面に照射するように構成されている。

【0209】図26は本発明の第21の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図26を参照して本発明の第21の実施形態を説明する。この実施形態も、図25と同様に、低温初期加熱光(赤外線)や励起光(紫外線)を照射する機構を備えたものである。

【0210】図26に示す第21の実施形態は、複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性導電体20を貫通して光導体27-1を設け、励起用光源装置29からの励起光を光導管28を経て、前記光導体の先端27-2より前記電磁気圧によって前記金属性導電体壁20と非接触に保持された前記熔融液体16表面に照射するように構成されている。

【0211】前述した本発明の第19～第21の実施形態は、光導管27-1を1個あるいは複数個用いることにより、発熱固体あるいは熔融液の表面に均一に励起光を照射することができる。また、これらの例は、光導管及びその先端部が水冷されたコイルあるいは金属導電体からの冷却を受けているため、反応生成物の折出を殆んど生じさせることがない。さらに、光導管は、絶縁体であるため電氣的な放電を全く起こさないという特徴もっている。また、光導管の設置は、前記金属性導電体20の絶縁縦溝20-3あるいは前記縦溝にはさまれた導電体20-4の何れを貫通しても良い。光源としては、ヨウ素入り赤外ランプや炭酸ガスレーザーが赤外線光として、また、紫外線光源として波長100nm～300nmの紫外光が用いられる。

【0212】また、目的に応じて、インコヒーレント光源(水銀ランプ、重水素ランプ、キセノンランプ等)やコヒーレント光源(レーザ)として、沸化アルゴン・エキシマレーザ、アルゴンイオンレーザ及びその第2高周波熱励起光源として、パルス炭酸ガスレーザ(赤外光)等を用いることもできる。

【0213】一般に、シリコン原料熔融液の製造あるいは結晶(単結晶ならびに多結晶)インゴットの製造は、発熱固体の表面温度及び熔融液温度の精密な測定と調節とが重要である。通常、温度測定には熱電対あるいは輻射温度計が用いられるが、熱電対は、高周波の誘導あるいは雑音(ノイズ)を受け易く信頼性が低くなる欠点もっている。また、輻射温度計は、前述までに説明した本発明の実施形態の場合、発熱固体あるいは熔融液表面と高周波コイル面との距離が極めて接近しているため、発熱(高温)している表面を直接測定(観察)することが難しい。

【0214】そして、本発明は、発熱固体あるいは熔融液を誘導電流による自己発熱により加熱する方法を主体

としているため、発熱体表面温度を直接測定し、帰還回路により、高周波発振機の出力を調整して温度調節を行わなければならない。しかし、発熱固体あるいは熔融液の温度は、高周波電流、周波数、高周波コイルと前記発熱体表面との距離、反応ガス流量等により変化するもので、正確な温度の測定を行うことは困難である。

【0215】前述した本発明の第19～第21の実施形態は、各種の条件により変動する発熱固体あるいは熔融液の温度を正確に測定し、帰還回路によって、高周波出力を調節し、あるいは、発熱体支持体とコイルとの距離等を変化させて、前記発熱固体あるいは熔融液温度を調整、安定化させることができる。

【0216】すなわち、前述した第19～第21の実施形態において、励起光源装置29を輻射温度計等の温度検出器に置き換える。そして、これらの実施形態は、高周波コイル1あるいは金属性導電体20の面を貫通して設けた光導体（サアイア、石英等）27-1を利用し、発熱固体あるいは熔融液からの高温輻射光を光源体先端27-2から受け、光導管（ファイバ）28を経て、輻射温度計等の温度検出器29により温度ならびに光電出力を測定し、さらに、帰還回路によって、高周波出力を調節し、あるいは、発熱体支持体と前記コイルとの距離等を変化させ、前記発熱固体あるいは熔融液温度を調整、安定化させることができる。

【0217】光導体27-1、光導体先端27-2、光導管（ファイバ）28は、その目的によって光エネルギーの通路及び温度測定用の通路として区分して設けてもよくあるいは共用することができる。光源あるいは温度検出器29は、予熱用の赤外線光源として、反応励起用の紫外線光源として、また、温度測定用の輻射温度検出器として、その目的に応じて、単独にあるいはハーフミラーや分光器等を使って複合使用可能に構成することができる。

【0218】図27は本発明の第22、第23の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図27を参照して本発明の第22、第23の実施形態を説明する。

【0219】前述までに説明した本発明の各実施形態における発熱固体8の下部表面8-1をガス吹出し口7を有する高周波コイル1により加熱し、前記下部表面8-1に、前記ガス吹出し口7より原料ガスを吹付け、その表面にシリコン熔融液滴8-1'を発生させるものは、原料ガスあるいは反応生成ガスが前記発熱固体の側面ならびに背面の高温部（シリコンの融点温度以下）に廻りこみ、固体多結晶を折出する。この折出した固体多結晶は、発熱固体の形状を変形させるばかりでなく、周辺に拡大して近傍の装置に接触したり、ときには高周波コイルとの間に放電を起し易くなり、円滑な作業を著しく妨げる原因となっている。

【0220】図27（a）に示す本発明の第22の実施

形態は、前述の問題点を解決することを可能としたもので、発熱固体8を取り囲んで、水冷された金属製外筒22-Aを配置し、発熱固体8と前記外筒22-Aとの間に不活性ガス（例えば、アルゴン、水素等）を流して、原料ガスならびに反応生成ガスの廻り込みを防いでいる。外筒22-Aは、複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性外障壁で、その内面に金メッキが施こされている。なお、図には、絶縁縦溝の切り込み位置を22-A'で示している。また、不活性ガスの供給は、原料ガス及び反応生成ガスの不要部への廻りこみを防止するもので、例えば、前記外障壁を、単純な水冷された金属性円筒としてもよく、また、図22（a）に示したガス吹出し口を有する金属性導電体20の円筒としてもよい。

【0221】前述までに説明した本発明の各実施形態におけるコイル1に下に設けた発熱固体18の上部に熔融液帯16を保持し、ガス吹出し口を有する水冷された高周波コイル1により、前記熔融液帯の加熱と、原料ガス供給と原料熔融液生成（原料供給）とを行わせながら単結晶（あるいは多結晶）インゴットの製造を行うものは、原料ガスあるいは反応生成ガスが前記熔融液帯16とインゴットである発熱固体18の固液界面、及び、発熱固体の側面や背面の高温部（シリコンの融点温度以下）に廻り込み、固体多結晶を折出（発生）させる。特に、固液界面に発生する折出結晶は、多結晶の発生核となり、成長単結晶18を破壊（多結晶化）してしう。また、多結晶の折出が熔融液形状や単結晶形状の変形、近傍装置への接触、高周波コイルとの放電を起し、生産を著しく妨げる原因となる。

【0222】図27（b）に示す本発明の第23の実施形態は、前述の問題点を解決することを可能としたもので、インゴットである発熱固体18と熔融液帯16とを取り囲んで、水冷された金属製外障壁（円筒）22-Bを配置し、単結晶インゴット18と外筒22-Bとの間に不活性ガスを流して、原料ガス及び反応生成ガスの廻りこみと、多結晶核の発生を防止したものである。前記外筒22-Bは、絶縁縦溝を有する水冷された金属性導電体20の外障壁で、その内面は金メッキが施されている。なお、絶縁縦溝の切り込み位置を22-B'として示している。また、前記外障壁は、単純な水冷された金属製円筒でもよく、また、図22（b）に示したガス吹出し口を有する金属性導電体20の円筒でもよい。

【0223】図28は本発明の第24の実施形態の構成を説明する断面図である。この図28に示す実施形態は、図27（a）と図27（b）とを組み合わせ使用するようにしたもので、基本的結晶成長と原料ガス供給との作用は、図19により説明した実施形態と同様である。この第24の実施形態において、上部外筒22-Aは上部の発熱固体8の外周、裏面への多結晶折出の防止を行っており、下部外筒22-Bは下部成長単結晶18の外周への多結晶折出と多結晶核発生との防止を行って

いる。

【0224】前述した第22～第24の実施形態のように、発熱固体あるいは高温単結晶（多結晶を含む）の周囲に水冷された金属性外筒を配置し、発熱固体と外筒との間に不活性のガスを流すことにより、高温部（シリコンの融点以下の温度）での多結晶析出あるいは多結晶核の発生を抑制することができ、これにより、気相から直接結晶（固体）を製造することが可能となり、これらの実施形態の効果は極めて大きなものである。また、前述の第22～第24の実施形態は、図20（b）により説明した空中に保持された浮遊溶融液体16'に接続された固体17'にも適用することができる。

【0225】図29は本発明の第25、第26の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図29を参照して本発明の第25、第26の実施形態を説明する。

【0226】前述までに説明した本発明の各実施形態における溶融点以上の高温度に保持された発熱固体表面あるいは溶融液表面に供給された原料ガスは、その表面で反応生成ガスや一部未反応の残留ガスを装置内に放出する。そして、発生した反応生成ガスは、反応装置内の器壁や治具あるいは高周波コイルに析出あるいは附着して微粒子（Particle）等を発生させて装置内に汚れを生じさせ、ときには高周波電流の放電等を生じさせる原因となる。

【0227】図29（a）、図29（b）に示す本発明の第25、第26の実施形態は、前述の問題点を解決することを可能としたもので、発熱固体（発熱固体あるいは高温に保持された結晶）の周囲に水冷された外筒を配置し、更に前記外筒の外周囲の一部あるいは全体に第2の外筒を配置し、前記外筒と前記第2の外筒との間から排気を行うことにより、装置内の汚染あるいは放電を防止することを可能とし、さらに、第2外筒を絶縁体を介して高周波コイルと連結することにより装置の小型化、ユニット化を図ったものである。

【0228】前述の第2外筒（排気カバー）は、一般に水冷された金属製外筒が用いられるが、不透明のため、発熱固体の下部表面における析出シリコンの発生状況、あるいは、温度測定のための観察が困難である。従って、第2外筒の下端部に観察用の視窓が必要となる。視窓は、透明な絶縁性固体（例えば、石英、ガラス、サファイア等）が用いられる。第2外筒の下端部は、高周波コイル外周部と前記視窓とを有する絶縁性固体を介して直結してもよく、また、高周波コイルの周辺も囲んで絶縁性材料（例えば、石英、プラスチック等）を配置し、これと前記第2外筒の下端部と直接結合させてもよい。

【0229】図29（a）に示す本発明の第25の実施形態は、前述までに説明した実施形態における発熱固体8の周囲に、第1外筒22-Aを配置すると共に、その外周にさらに第2外筒23-A及び観察用透明外筒（視

窓）23-A'が配置されて構成されている。視窓23-A'は、第2外筒23-Aの一部に視窓を設けて構成してもよい。高周波コイル1には、コイル1を取囲むように絶縁性材料で作られたプレート24が接続面25を介して配置されている。このプレート24は、第2外筒下端部と接続されている。そして、第25の実施形態は、第1外筒と第2外筒との間から、反応生成ガス及び発熱固体と第1外筒間に流れる不活性ガスを強制排気することにより、高周波コイルの中央部からの背面側への生成ガスの回りこみを防止することができる。なお、生成原料溶融液滴9は、重力により下部装置に供給される。

【0230】図29（b）に示す本発明の第26の実施形態は、単結晶固体である発熱固体18の上部に溶融液帯16を保持しつつ、原料ガスを供給し、単結晶成長を行う場合に用いられる構造例である。この実施形態も第25の実施形態の場合と同様に、前述までに説明した実施形態における発熱固体8の周囲に、第1外筒22-Bを配置すると共に、その外周にさらに第2外筒23-B及び観察用透明外筒（視窓）23-B'が配置されて構成されている。そして、第26の実施形態も、図29

（a）の場合と同様に、第1外筒及び第2外筒の間からの反応生成ガスを強制排気することにより、反応生成ガスの高周波コイル上部（裏面）への流出を防止することができる。また、視窓より、溶融液16及び単結晶18の固液界面、溶融液側面形状を観測して円滑な結晶成長作業を行うことができる。視窓23-B'は、第2外筒23-Bの一部に視窓を設けて構成してもよい。

【0231】図30は本発明の第27、第28の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図30を参照して本発明の第27、第28の実施形態を説明する。

【0232】前述で説明した第25、第26の実施形態は、装置内に発生した反応生成ガスや未反応ガスを、第2の外筒23-Aあるいは23-Bと第1の円筒22-Aあるいは22-Bとの間から大部分が強制排気される。しかし、高周波コイル中央部の穴付近では、乱流、拡散により反応生成ガスの一部が高周波コイルの裏面に流出して、微粒子発生あるいは放電を促し易くなる。この流出を確実になくすためには、高周波コイルの裏面（背面）と高温反応面（表面）との間に不活性ガス流あるいはガス圧力差を発生せしめる必要がある。図30（a）、図30（b）に示す本発明の第27、第28の実施形態は、前述した問題点を解決することができるものである。

【0233】図30（a）に示す本発明の第27の実施形態は、高周波コイル1の上部に配置される発熱固体8と対向するコイル面と反対側のコイル面に絶縁体を介してあるいは絶縁性材料（例えば、石英、プラスチック等）を用いて、前記上部の発熱固体8のほぼ中央部の溶



融液滴9の滴下位置に対向して溶融液（滴）取り出し用の開口部（孔または円筒）26-A''を有するキャップ（カバー）26-Aを配置し、コイル面と前記キャップ26-Aとの間に、ガス導入口26-A'を設けて、不活性ガスを流入させることにより、反応生成ガスの装置内への流出を防止するようにしたものである。不活性ガスの導入は、図に示したガス導入口26-A'からに限らず、液滴9の取り出し口26-A''からでもよく、また、高周波コイル下部に設けられたガス吹出口（図示せず）から行ってもよい。また、不活性ガス導入口26-A'は、必要に応じて排気口としても用いることもでき、目的によっては、例えば、粒状結晶の製造において、液滴の取り出し口26-A''を長くすることにより、粒状結晶の冷却固化を速やかに行うこともできる。

【0234】図30（b）に示す本発明の第28の実施形態は、高周波コイル1の下部に配置される発熱固体18と対向するコイル面と反対側のコイル面に絶縁体を介してあるいは絶縁性材料を用いて、キャップ（カバー）26-Bを配置し、コイル面と前記キャップ26-Bとの間に、ガス導入口26-B'を設けて、不活性ガスを流入させることにより、反応生成ガスのコイル裏面ならびに装置内への流出を防止するようにしたものである。不活性ガスの導入は、ガス導入口26-B'からに限らず、高周波コイルの上部に設けられたガス吹出口（図示せず）から行ってもよい。また、不活性ガス導入口26-B'は、必要に応じ、排気口として用いることができる。

【0235】前述した本発明の第27、第28の実施形態は、キャップを採用することにより、反応生成ガスをより確実に排出して、装置内での微粒子（パーティクル）発生を抑え、装置内の汚染、放電を防止することができる。すなわち、第27、第28の実施形態は、ガス吹出し口を有する高周波コイルと、発熱固体と、これを取囲んだ第1外筒及び第2外筒と、さらに、キャップとを組合せることにより、原料溶融液発生（製造）装置のユニットを構成することができ、他の装置と組合せて粒状結晶製造、浮遊帯溶融液への連続原料供給、単結晶引上溶融液への連続原料供給を行う等の多くの単結晶、多結晶インゴットの製造に用いることができるものである。また、第28の実施形態は、ガス吹出し口を有する高周波コイルと、上部に溶融液帯を保持する発熱固体としての固体結晶（単結晶ならびに多結晶）と、これを取囲んだ第1外筒及び第2外筒と、さらに、キャップとを組合せることにより、結晶インゴット製造装置のユニットを構成することができ、連続結晶インゴットの製造に用いることができる。

【0236】図31は本発明の第29、第30の実施形態による装置の構成を説明する断面図であり、以下、図31を参照して本発明の第29、第30の実施形態を説明する。本発明の第29、第30の実施形態は、前述で

説明した第25、第26の実施形態と他の実施形態とを組み合わせる構成した実施形態である。

【0237】図31（a）に示す本発明の第29の実施形態において、高周波コイル1は、その上下にガス吹出し口7-1と7-2とを有し、コイル1の上部には発熱固体8を囲んで第1外筒22-Aと第2外筒23-Aが配置され、第2外筒の下端部に覗き窓23-A'が配置され、これらが、絶縁性材料プレート24を介して前記高周波コイル1に接続されている。コイル1の下部には、上部に溶融液帯16を保持する単結晶（または多結晶）である発熱固体18と、これを取囲んだ第1外筒22-Bが配置されている。

【0238】前述において、上部発熱固体8の下部表面8-1は、高周波コイルからの誘導加熱によりシリコンの融点以上の温度に加熱されており、これに向かって原料ガスがガス吹出し口7-1より吹付けられ、反応（還元あるいは分解）により、溶融液滴8-1'を発生させる。発生した溶融液滴は、重力により下降して、発熱固体8の下部先端8-2に到り、コイル下部の溶融液帯16に供給される。反応生成ガスは、第1外筒と第2外筒との間から速やかに系外に排出される。

【0239】溶融液帯16を保持する単結晶18は、溶融液帯の増加と同期して、回転しつつ下降され単結晶成長が行われる。溶融液帯16の直径は、その周囲に配置された金属性の第1外筒からの電磁気圧力によって一定に保たれ、溶融液の漏出が防止されている。このときコイル1のガス吹出し口7-2からは不活性ガスが溶融液帯16の表面に吹付けられ、単結晶18と第1外筒22-Bとの間に供給される不活性ガスと共に、成長結晶18と溶融液帯16との固液界面への反応生成ガス回り込みと多結晶核発生を防止している。

【0240】図31（b）に示す本発明の第30の実施形態において、高周波コイル1は、上下にガス吹出し口7-1、7-2を有し、上部の発熱固体8の下部表面8-1にガス吹出し口7-1より原料ガスを吹付けている。下部表面8-1に発生した溶融液滴8-1'は、下部溶融液帯16に供給される。一方、下部溶融液帯16の表面にガス吹出し口7-2より原料ガスが吹付けられて溶融液が発生する。すなわち、この実施形態は、上下2面で原料液を発生させることができる。

【0241】そして、下部の溶融液帯16を保持する単結晶18は、溶融液の増加と同期して、回転しつつ下降させられて単結晶成長が行われる。溶融液帯16の直径は、図31（a）の場合と同様に、その周囲に配置された金属性の第1外筒からの電磁気圧力によって一定に保たれている。さらに、第1外筒の外側に第2外筒（カバー）23-Bが配置され、その間から反応生成ガスの排出が行われる。

【0242】以上、本発明の多数の実施形態について説明したが、本発明は、その目的により、前述の実施形態



を組合せ、あるいは、変形を行うことができる。また、前述した本発明の各実施形態の長所をまとめると以下の通りである。

【0243】本発明の実施形態によれば、原料ガス吹出し口を有する水冷された高周波コイルを用いて、折出原料の熔融点温度以上に固体下部表面を加熱し、その表面に原料ガスを吹出つけて原料成分の熔融液を発生させ、これを発熱固体の低部より滴下させ、あるいは、下降流出させることにより、連続して原料熔融液の供給を行うことができる。

【0244】本発明の実施形態によれば、前記滴下熔融液滴を直接冷却固化あるいは回転体表面に衝突飛散させて細分化して冷却固化させることができ、結晶核を用いることなく、また、装置からの汚染を受けることなく、気体原料から高純度粒状結晶固体を得ることができる。

【0245】本発明の実施形態によれば、前記滴下熔融液を高温に保持された石英るつぼ内に供給して、これを冷却固化し、多結晶ブロックの製造を行うことができる。従来の多結晶原料は、溶解すると容積が著しく減少するが、本発明はるつぼの内容積一杯に使えるため原料充填率を向上させることができる。

【0246】本発明の実施形態によれば、前記滴下熔融液を直接供給原料として、これを高温に保持された単結晶引上用石英るつぼ内に直接供給して、円滑な連続単結晶引上を行うことができる。従来の連続引上法は、供給原料として粒状結晶や多結晶棒が用いられているが、粒状結晶が溶解しにくく、また飛散して成長中の単結晶を多結晶化してう等の欠点があり、多結晶棒の先端を加熱溶解して、その熔融液滴を供給する場合、装置が大形化し、また溶解のために大きな電力が必要となる欠点があった。

【0247】本発明の実施形態によれば、前記滴下熔融液を同一コイルの直下に配置され、固体単結晶上に保持された熔融液の浮遊帯に直接原料として供給し、前記単結晶上に連続浮遊帯法により結晶成長を行うことができる。これにより、原料となる長尺の多結晶インゴットを用いる必要をなくすことができる。

【0248】本発明の実施形態によれば、前記滴下熔融液を、第2のコイルの直下に配置された固体単結晶インゴットの上に保持された熔融液の浮遊帯に直接原料として供給し、連続浮遊帯法により結晶成長を行うことができる。第2のコイルを用いることにより、第1のコイルの電源出力条件と独立して結晶成長を行わせることができ、また、第1のコイル近傍の残留生成ガスの影響も少く、種子付けあるいは液滴溜り用の障壁囲いの取付、交換を容易に行うことができる。

【0249】本発明の実施形態によれば、前記滴下あるいは下降流出する熔融液を、前記発熱固体の下部突起先端に表面張力によって保持しつつ、これに種子結晶を接続し、無転位単結晶の製作を行うことができる。すなわ

ち、この実施形態によれば、原料多結晶棒を用いることなく、気体原料ガスから直接無転位単結晶インゴットを作ることができる。

【0250】本発明の実施形態によれば、前記滴下あるいは下降流出する熔融液を、底部に孔を有する障壁囲い円筒内に受け、底部孔を介して種子結晶により種子付けを行って結晶成長を行わせることができる。この実施形態は、前記円筒により滴下熔融液による飛散・振動を防ぎ、さらに、結晶直径の拡大に伴い障壁円筒の外周に円板を配置することにより、添加不純物の蒸発防止と酸素供給とを行うことができる。

【0251】本発明の実施形態によれば、原料ガス吹出し口を有する水冷された高周波コイルを用いて、発熱固体の上部表面を折出原料の熔融点温度以上に加熱し、これに前記コイルより原料ガスを吹付け原料成分の熔融液を発熱固体上部に発生させ、その熔融液を前記固体の上部に保持しつつ、さらにその熔融液表面に原料ガスを吹付けて原料成分の熔融液の供給を行いつつ、浮遊帯法により結晶製造を行うことができる。さらに、この実施形態によれば、漏斗状あるいは傘形状の発熱固体を用いて、その上部表面を加熱し、同時に原料ガスを吹付けて、固体表面に原料熔融液を発生させ、これを中央の穴より滴下あるいは周辺部より回転飛散させて結晶の製造を行うことができる。

【0252】本発明の実施形態によれば、発熱固体結晶の上部表面を前記コイルにより加熱し、同時に原料ガスを供給して、単結晶上部に原料熔融液帯を形成し、さらに原料ガスを熔融液帯の表面に供給しつつ、浮遊帯法により、単結晶成長を行うことができる。すなわち、この実施形態によれば、ガス原料より直接連続して結晶の成長を行わせることができる。

【0253】本発明の実施形態によれば、傘形発熱固体の上部表面を前記ガス吹出し口を有する高周波コイルにより加熱し、同時にその表面に原料ガスを吹付けて原料熔融液を発生させ、前記傘形発熱固体を高速に回転させることにより、原料熔融液を回転飛散させ粒状結晶を製作することができる。

【0254】本発明の実施形態によれば、漏斗状の発熱固体の上部表面を前記ガス吹出し口を有する第1のコイルにより加熱し、同時にその表面に原料ガスを吹付けて原料熔融液を発生させ、漏斗状の固体ロットの中央部に設けられた孔より生成原料熔融液を滴下させ、この滴下原料液滴を第2の高周波コイルにより、単結晶上部に加熱保持された熔融液帯に供給し、浮遊帯法により単結晶の成長を行わせることができる。

【0255】本発明の実施形態によれば、漏斗状の発熱固体の上部表面を前記ガス吹出し口を有するコイルにより加熱し、同時にその表面に原料ガスを吹付けて原料熔融液を発生させ、漏斗状の固体ロットの中央部に設けられた孔より生成原料熔融液を滴下させ、この滴下原料を

加熱された石英るつぼ内の熔融液に供給し、るつぼ内熔融液表面より種子結晶を用いて引上法により連続して単結晶の成長を行わせることができる。

【0256】本発明の実施形態によれば、両面にガス吹出し口を有する水冷された高周波コイルを用い、コイルの上下面に対向して発熱固体を配置し、上部固体の下部表面ならびに下部固体の上部表面を、折出原料の溶融点温度以上に加熱し、その表面に原料ガスを吹付けて原料成分の熔融液を発生させ、上部固体の下部表面に発生するより折出熔融液を、滴下あるいは下降流出させて、同時に下部固体の上部に保持された折出熔融液帯の表面に供給し、さらに熔融液表面で原料熔融液を発生させて下部固体上に連続結晶成長を行うことができる。すなわち、この実施形態によれば、上下発熱固体の両面で原料成分の発生を効率よく行って、結晶の成長を行わせることができる。

【0257】本発明の実施形態によれば、コイルの断面構造が漏斗状あるいは容器状とされ、ガス吹出し口を有する水冷された高周波コイルを用いて、その内側に原料熔融液を配置し、ガス吹付けによる浮揚力と電磁気力による浮揚力とにより前記熔融液を空中に安定保持させ、原料熔融液の加熱と同時に原料ガスの吹付けにより原料熔融液を供給することにより、大量の原料熔融液の製造を行うことができる。また、この実施形態によれば、前記空中に保持された原料熔融液の一部（上部あるいは下部）に固体結晶を接続して、固体結晶の一方より結晶成長を行わせることができる。

【0258】本発明の実施形態によれば、ガス吹出し口を有する高周波コイルの上部に保持された発熱固体の下部に原料ガスを吹付け、発生した滴下熔融液滴を、同一コイルあるいは第2コイルの直下に配置された発熱固体の上部に保持された浮遊熔融帯に供給して浮遊帯法により結晶成長を行うに当り、前記熔融帯を取り囲んで、複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性導電体外障壁を配置することにより、導電体外障壁と熔融液との間に発生する電磁力により、熔融液の外周を非接触に保持することができ、安定に滴下原料熔融液の供給を行い、結晶成長を行わせることができる。

【0259】本発明の実施形態によれば、ガス吹出し口を有する高周波コイルの下部に保持された固体の上部に原料熔融液帯を保持し、熔融液表面に原料ガスを供給して原料熔融液の発生と供給を行いつつ浮遊帯法により結晶成長を行うに当り、前記熔融帯を取り囲んで、複数の絶縁機構を有する水冷された金属性導電体外障壁を配置することにより、導電体外障壁と熔融液との間に発生する電磁力により、熔融液の外周を非接触に保持ことができ、前記コイルからの原料ガス吹付けにより、安定に原料熔融液の供給と熔融液帯の保持とを行って結晶成長を行わせることができる。

【0260】本発明の実施形態によれば、ガス吹出し口

を有する高周波コイルの上部に保持された発熱固体の下部に原料ガスを吹付け、発生した滴下熔融液滴を、同一コイルあるいは第2のコイルとその直下に配置された固体の上部に保持された浮遊熔融帯に供給して浮遊帯法により結晶成長を行うに当り、前記熔融帯を取り囲んで、ガス吹出し口を有し複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性導電体外障壁を配置することにより、熔融液の外周をガス圧及び電磁力により非接触に安定保持することができ、金属性導電体外障壁より熔融液表面に原料ガスあるいは不活性ガスを吹付け、同時に前記滴下熔融液滴を熔融液帯に供給して結晶成長を行わせることができる。

【0261】本発明の実施形態によれば、ガス吹出し口を有する高周波コイルの下部に保持された発熱固体の上部に原料熔融液帯を保持し、熔融液表面に原料ガスを供給して原料熔融液の発生と供給を行いつつ、浮遊帯を取り囲んで、ガス吹出し口を有し複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性導電体外障壁を配置することにより、熔融液の外周をガス吹出し圧力及び電磁力により非接触に安定保持することができ、前記コイル及び金属性導電体外障壁より、熔融液表面に原料ガスあるいは不活性ガスを吹付けて原料熔融液の供給を行いつつ、安定して浮遊帯法による結晶成長を行わせることができる。

【0262】本発明の実施形態によれば、ガス吹出し口を有し複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性導電体によって、底面を有する皿状の障壁囲いを構成し、その底面部に、コイル上部に配置された発熱固体の下部表面に原料ガス吹付けて発生した熔融原料液滴を供給して、平板状に金属熔融液帯を作り、熔融液の水平表面に対向して水平に配置された平板状コイルによって、これを均一に加熱し、金属性導電体からのガス吹付けと、熔融液と金属性導電体の間に発生する電磁気力によって、熔融液を障壁囲いと非接触に保持しつつ、これを回転冷却して平板状結晶（ウエーハ）を製作することができる。また、この実施形態によれば、原料供給を続けることによって結晶インゴットを作ることができる。さらに、この実施形態は、熔融液原料供給の例としているが、前記金属熔融液に、前記金属性導電体のガス吹出し口から直接原料ガスを供給してもよく、また、粒状結晶を皿状の障壁の底面部に供給し、これを高周波加熱によって溶解し、そのままあるいは前記金属性導電体から原料ガスを供給して結晶の製造を行うことができる。すなわち、この実施形態によれば、金属性熔融液の供給原料として、気体、液体あるいは固体の何れも使用することができる。

【0263】本発明の実施形態によれば、ガス吹出し口を有し複数の絶縁縦溝を有する水冷された金属性導電体によって構成される円筒、るつぼあるいはボート形の障壁囲いあるいは底面部を有する障壁囲いと、その内部に配置された固体結晶と接続した金属性熔融液とを配置保持することにより、その熔融液を、前記金属性導電体の外側に配置された高周波コイルによって加熱し、同時に

前記ガス吹出し口より原料ガスを吹付けて原料熔融液の供給を行い、前記固体結晶上に結晶成長を行うことができる。この実施形態は、気体原料供給の例を示したが、液体原料や固体原料の供給も、第21の実施形態の場合と同様の方法で行うことができる。すなわち、この実施形態は、原料供給原料として、気体、液体あるいは固体の何れでも用いることができ、また、大量の熔融液の保持を行うことができ、熔融液上部から種子結晶を用いて引上法により結晶成長を行わせることができる。

【0264】本発明の実施形態によれば、前記ガス吹出し口を有する高周波コイル面あるいは絶縁縦溝を有する金属性外障壁面を貫通して、透明固体による光通路（光導管）を配置し、前記原料ガス吹付けを行う発熱固体表面あるいは熔融液表面に、光導管を通して赤外線あるいは紫外線を照射することにより、供給ガスの原料熔融液への変換効率及び収率の向上を計ることができる。また、この実施形態は、前記光導管を通して、前記原料ガス吹付けを行う発熱固体あるいは熔融液の表面温度を直接検出し、帰還回路を介して検出出力により高周波電源の出力調整を行うことができ、前記表面温度を測定しながら、前述の調節を行うことにより、安定した原料熔融液の供給と結晶成長とを行うことができる。

【0265】本発明の実施形態によれば、融点温度以上に加熱された発熱固体あるいは結晶上部に保持された熔融液帯の表面に原料ガスを供給するに当り、前記発熱固体あるいは熔融液帯を保持する固体結晶の周囲に、水冷された第1の外筒を配置しているので、その間に不活性ガスを流すことにより、発熱固体の側面や背面あるいは前記結晶の側面に原料ガスの廻り込みによる多結晶折出を防止し、発熱固体の変形、近傍装置との接触、コイルとの間の放電あるいは成長単結晶の多結晶化を起すことを防止することができる。

【0266】本発明の実施形態によれば、前記発熱固体の周囲に配置された第1の外筒のさらに外周囲に第2の外筒を配置しているので、第1の外筒と第2の外筒との間から反応生成ガスを排気することができ、反応室内への反応ガスの拡散と汚染とを防止することができ、さらに装置の小形化を計ることができる。

【0267】本発明の実施形態によれば、前記第2の外筒に透明固体部あるいは覗き窓部が設けられ、さらに絶縁体を介して高周波コイルと第2の外筒部とが接続されているので、反応生成ガスの拡散、汚染を防止し、装置の小形一体化を図ることができ、高温反応領域の生成原料熔融液の発生状況及び結晶成長状況の観察を容易に行うことができる。

【0268】本発明の実施形態によれば、前記上部発熱固体が配置された高周波コイル面と反対側のコイル面、あるいは、前記下部発熱固体が配置されたコイル面と反対側のコイル面に、絶縁体を介して水冷された金属材料あるいは絶縁性材料を用いたキャップが設けられてお

り、キャップとコイル面との間に不活性ガスを流し、あるいは、これらの間から排気を行うことにより、反応生成ガスを速かに排出して、装置内への反応生成ガスの拡散、汚染を防止することができる。また、この実施形態によれば、前記上部発熱固体のコイル面と反対側のコイル下部面に配置されたキャップに開口部（孔または円筒）を設けて、滴下する熔融液滴を取り出すことができる。

【0269】本発明の実施形態によれば、前記高周波コイルあるいは複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体の片面あるいは両面に、少なくとも1個以上複数個のガス吹出し口を配置しているので、高周波加熱面の至近距離から原料ガスの均一な供給を行うことができる。さらに、この実施形態によれば、複数種類のガス（例えば、原料ガスならびに不活性ガス）を供給することが可能となり、原料ガス供給、生成ガスの排除、あるいは、相互に反応し易い複数種類の反応性ガスを独立に供給することができる。また、この実施形態によれば、複数のガス吹出し口より供給されるガス圧により電磁力と共に金属熔融液を前記金属性導電体による容器壁あるいは障壁と非接触に安定に保持させることができる。

【0270】本発明の実施形態によれば、前記高周波コイルあるいは複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体のガス吹出し口のガス吹出し方向が、前記発熱固体の表面あるいは前記熔融液表面に対し、垂直あるいは傾角度を持つてっているので、ガスの乱流防止と共に均一なガス供給とその置換を行うことができる。

【0271】本発明の実施形態によれば、前記コイルの上部に配置された発熱固体の下部表面の加熱と、前記コイルの下部に配置された発熱固体の上部に熔融帯を形成するための加熱を行うに当り、ガス吹出し口を有する1個の高周波コイルを用いて、その上下両面での加熱を行い、同時に原料熔融液の供給と結晶成長とを行わせることができる。さらに、この実施形態によれば、第1のコイルの下部に第2のコイルを配置することができ、これにより、第1のコイル上部の発熱固体下部表面からの原料熔融液滴の発生、あるいは、第1のコイル下部の傘形発熱固体の上部表面から原料熔融液滴の発生を行わせ、その滴下熔融液滴を第2コイルの下部固体結晶上部に加熱保持された浮遊熔融液帯に供給し、第1のコイルと第2のコイルとの出力を独立に調整して、種子付け及び単結晶成長を行わせることができる。

【0272】本発明の実施形態によれば、前記高周波コイル及び複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体障壁のガス吹出し口を有する面が高い反射率を有する金、銀、銅、アルミニウム、アルミニウムあるいはそのメッキ等により構成されているので、発熱固体あるいは熔融液表面からの熱輻射（熱放射）による熱損失を減少させることができ、高温部の保温性を高め（省エネルギー）、かつ、高熱伝導材料のため、前記コイル及び金属性導電体の冷

却効果を高めることができ、供給ガスの予熱による分解を防止して、反応表面への原料ガスの安定供給を図ることができ、また、その表面を鏡面にすることによってその効果を一層高めることができる。

【0273】本発明の実施形態によれば、前記高周波コイルあるいは複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体障壁（容器）へのガス供給管の接続点を接地することができ、これにより、放電による事故を未然に防止することができ安全性の向上を図ることができる。

【0274】

【発明の効果】以上説明したように本発明によれば、シリコン単結晶の製造に当り、従来用いられてきた粒状結晶や多結晶棒を用いることなく、気相—液相—固相の連続共存反応法（VLS法）により、気体原料から液体原料を発生させながら、同時に単結晶あるいは固体結晶を製造することができる。そして、本発明は、ガス吹出し口を有する高周波コイルあるいは複数の絶縁縦溝を有しガス吹出し口を有する金属性導電体障壁と高周波コイルとを用いて、固体表面あるいは熔融液表面を成分原料の溶融点温度以上に加熱し、これに向って原料成分ガスを吹付けることにより、原料熔融液滴を得るという基本的な構成を有するものであり、次のような効果を得ることができる。

【0275】（1）上部発熱固体の下部表面に原料ガスを吹付けて原料熔融液滴を発生させ、これを滴下あるいは下降流出させているので、この原料熔融液を用いて粒状結晶の製造、石英をつば内で固化することによる多結晶インゴットの製造、単結晶引上中の熔融液への連続原料熔融液供給による浮遊帯法による単結晶の製造、第2コイルを用いた下部固体上部熔融液への原料供給による浮遊帯法による単結晶の成長、発熱固体及び絶縁体障壁を用いた種子付けによる単結晶成長を行うことができる。

【0276】（2）下部発熱固体上部あるいはその上部に熔融液帯（浮遊帯）を保持しこれに原料ガスを吹付けて原料熔融液を発生させているので、熔融液供給、連続浮遊帯法による単結晶成長への原料供給、傘形発熱固体を用いた回転飛散による粒状結晶の製造、漏斗形発熱固体の中央部孔よりの液滴供給、第2コイルを用いた浮遊帯への液滴の供給、滴下熔融液滴をるつぼ内熔融液へ供給して連続単結晶引上を行うことができる。また、上部発熱固体と下部固体上の熔融液とを同時に加熱して、原料熔融液の滴下供給と熔融液表面での熔融液供給とを同時にいっつつ浮遊帯法により単結晶成長を行うことができる。

【0277】（3）漏斗状あるいは容器状断面を有し、ガス吹出し口を有する高周波コイルを有して、熔融液の空中保持、熔融液の供給を行い、また、熔融液に固体結晶を接続して熔融液の安定保持と結晶成長とを行うことができる。

【0278】（4）複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体障壁あるいはガス吹出し口を有する前記金属性導電体障壁により構成される容器を用いることにより、浮遊帯熔融液の安定保持、滴下熔融液供給あるいは熔融液折出による直接的な原料液の供給、金属性導電体障壁からのガス吹出しによる浮遊帯熔融液の安定保持、熔融液折出による直接的な原料液の供給、皿形障壁による板状結晶（ウェーハ）の製造、容器形状障壁による大容量熔融液の保持、各種原料（気体、液体、固体）供給による結晶インゴットの製作を行うことができる。

【0279】（5）ガス吹出し口を有する高周波コイルあるいは前記導電体障壁を貫通してガス吹付け面に向って、透明固体による光導路をもうけることにより、赤外線あるいは紫外線を照射して、高温表面での原料ガスの分解速度を加速し、気体—液体の変換効率を向上させることができる。また、ガス吹付け面の温度を検出し、帰還回路により電源出力を制御して温度調節を行うことができる。

【0280】（6）発熱固体あるいは熔融液帯を保持する固体結晶の周囲に第1外筒を配置し、不活性ガスを流すことにより、反応ガスの廻りこみによる多結晶の折出を防止することができる。また、第1外筒の外周に第2外筒を配置し、これらの間から排気を行うことにより、反応生成ガスの拡散、汚染を防止することができる。また、第2外筒に覗き窓を備えることにより内部の観察が容易となる。さらに、コイルの片面にキャップを設け、不活性ガスを供給しあるいは排気を行うことにより、反応生成ガスの置換を行うことができる。また、キャップの一部に開口部を設け、滴下熔融液の取出しを行うこともできる。

【0281】（7）ガス吹出し口の数、ガス吹出し面、供給ガス種類、ガス吹出し方向を選ぶことにより、原料ガスの均一供給、不活性ガスによる反応生成ガスの置換、熔融液帯の容器壁との非接触保持を行うことができる。

【0282】（8）高周波コイルを複数個用いることにより、原料熔融液の発生の条件と結晶成長の条件とを各々独立に制御することができる。また、高周波コイル及び金属性導電体障壁のガス吹出し面を高反射率を有する金属で構成し、鏡面にすることにより、熱損失を防止（省エネルギー）し、コイル及び導電体障壁の冷却効果を向上させることができる。さらに、ガス導入口を接地することにより、局部的放電による事故を防止して安全性を向上させることができる。

【0283】以上説明したように本発明によれば、新しいVLS法による装置の提供と実用化を達成することができ、装置の小形化、省エネルギー化、工程短縮化、大巾なコストダウン化を図ることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の第1の実施形態による装置の構成を説

明する断面図である。

【図2】図1の装置の上面より見た構成を説明する図である。

【図3】本発明の第1の実施形態による装置の変形例の構成を説明する断面図である。

【図4】図3の装置の上面より見た構成を説明する図である。

【図5】図1～図4により説明した実施形態における平板状単巻コイル1と同一の機能を持つ平板状複数回巻コイルを用いた装置の例を示す図である。

【図6】本発明の第2の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図7】本発明の第2の実施形態の変形例による装置の構成を説明する断面図である。

【図8】図1～図7により説明した装置の上面より見たコイル表面に設けられたガス吹き出し口及びガス吹き出し方向の配置例を示す図である。

【図9】図1～図7により説明した装置に用いられる発熱固体の構造及び配置の例を示す図である。

【図10】図1～図7により説明した装置に用いられる高周波コイルのガス吹き出し口の構造及び配置の例を示す図である。

【図11】本発明の第3の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図12】本発明の第4の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図13】本発明の第5の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図14】本発明の第6の実施形態による装置、及び、その変形例の構成を説明する断面図である。

【図15】本発明の第7の実施形態による装置、及び、その変形例の構成を説明する断面図である。

【図16】本発明の第8の実施形態による装置、及び、その変形例の構成を説明する断面図である。

【図17】図15(b)及び図16(b)、図16(c)により説明した例で用いられた絶縁体障壁円筒19の形状例の幾つかを示す図である。

【図18】本発明の第9～第11の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図19】本発明の第12の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図20】本発明の第13の実施形態による装置、及び、その変形例の構成を説明する断面図である。

【図21】本発明の第14の実施形態による装置、及び、その変形例の構成を説明する断面図である。

【図22】本発明の第15の実施形態による装置、及び、その変形例の構成を説明する断面図である。

【図23】本発明の第16、第17の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図24】本発明の第18の実施形態による装置の構成

を説明する断面図である。

【図25】本発明の第19、第20の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図26】本発明の第21の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図27】本発明の第22、第23の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図28】本発明の第24の実施形態の構成を説明する断面図である。

【図29】本発明の第25、第26の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図30】本発明の第27、第28の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図31】本発明の第29、第30の実施形態による装置の構成を説明する断面図である。

【図32】原料ガスから直接単結晶を製造する従来技術による結晶製造装置を説明する図である。

#### 【符号の説明】

- 1 ガス吹き出し口を有するコイル
- 1' 第2コイル
- 1'' 金属性導体障壁の外部コイル
- 1-1 鏡面
- 2-1 コイル端子
- 2-1' コイル端子止ネジ
- 2-2 コイル端子
- 2-2' コイル端子止ネジ
- 3-1 冷却水入口
- 3-2 冷却水出口
- 4 冷却水通路
- 5 ガス取入口
- 5-1 ガス(1)の取入口
- 5-2 ガス(2)の取入口
- 5' 導電体のガス取入口
- 5'-1 導電体のガス(1)の取入口
- 5'-2 導電体のガス(2)の取入口
- 6 ガス通路
- 6-1 ガス(1)の通路
- 6-2 ガス(2)の通路
- 7 ガス吹き出し口
- 7-1 ガス(1)の吹き出し口
- 7-2 ガス(2)の吹き出し口
- 7' 導電体のガス吹き出し口
- 7'-1 導電体のガス(1)の吹き出し口
- 7'-2 導電体のガス(2)の吹き出し口
- 8 発熱固体
- 8-1 発熱固体表面
- 8-1' 析出溶液液滴
- 8-2 発熱固体下部突起
- 8-3 発熱固体支持突起部
- 8-4 発熱固体溶液液溜り

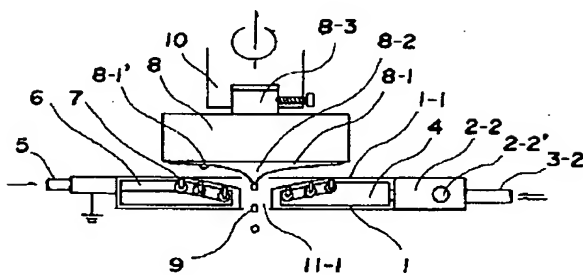
- 8-5 発熱固体下部穴
- 8-6 漏斗状発熱固体の下部円筒
- 9 溶融原料液滴
- 9' 粒状結晶
- 9'' 飛散原料液滴
- 10 発熱固体支持装置
- 11-1 高周波コイル中央部の孔
- 11-2 高周波コイル端子間のスリット
- 12 冷却用円筒
- 12' 不活性ガス導入口
- 13 石英るつぼ
- 13' 石英るつぼ支持容器
- 14 回転固体
- 14' 回転軸
- 15 加熱装置
- 16 原料熔融液
- 16' 浮遊熔融液体
- 16-1 熔融液表面
- 16-2 障壁円筒内熔融液
- 17 種子結晶
- 17' 固体結晶
- 18 単結晶インゴット
- 18' 固化結晶
- 19 障壁円筒
- 19-1 障壁円筒底孔
- 19-2 障壁円筒外周円板

- 20 複数の絶縁縦溝を有する金属性導電体容器
- 20-1 絶縁性縦溝切込み位置
- 20-2 絶縁性縦溝を有する金属性導電体底部
- 20-3 絶縁性縦溝
- 20-4 縦溝により分離された導電体壁
- 21 下部発熱固体支持装置
- 22-A 上部第1外筒
- 22-A' Aの絶縁縦溝の切込み位置
- 22-B 下部第1外筒
- 22-B' Bの絶縁縦溝の切込み位置
- 23-A 上部第2外筒
- 23-A' 上部第2外筒の視窓
- 23-B 下部第2外筒
- 23-B' 下部第2外筒の視窓
- 24 絶縁性プレート
- 25 高周波コイルと絶縁性プレートの接続面
- 26 石英管
- 26-A 開口部を有するコイル下部キャップA
- 26-A' キャップAへのガス導入口
- 26-A'' キャップAの開口部
- 26-B コイル上部キャップB
- 26-B' キャップBへのガス導入口
- 27-1 光導体
- 27-2 光導体先端
- 28 透明ファイバー
- 29 (赤外線、紫外線) 光源装置あるいは温度検出機

【図1】

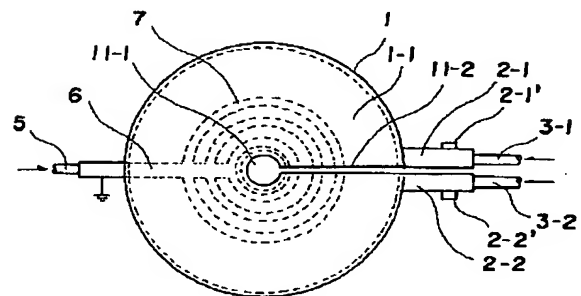
【図2】

【図1】



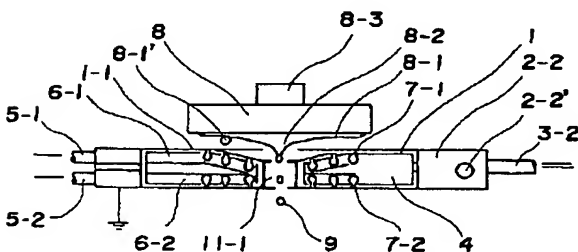
【図7】

【図2】

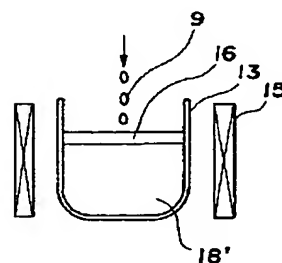


【図12】

【図7】



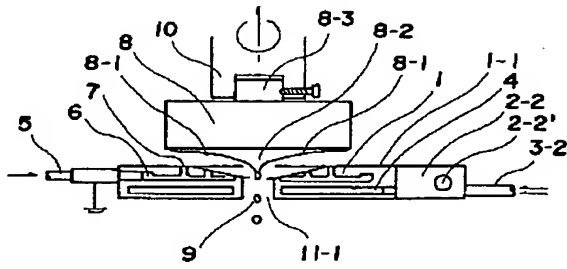
【図12】





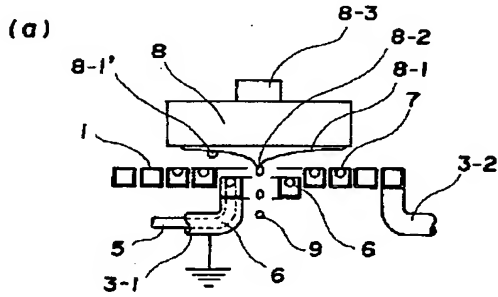
【図3】

【図3】

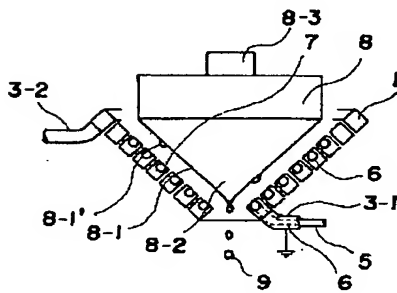


【図5】

【図5】

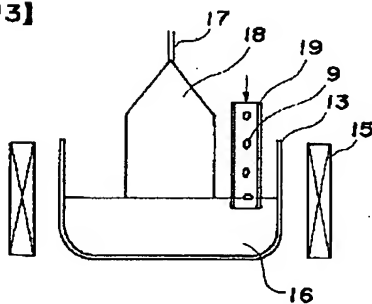


(b)



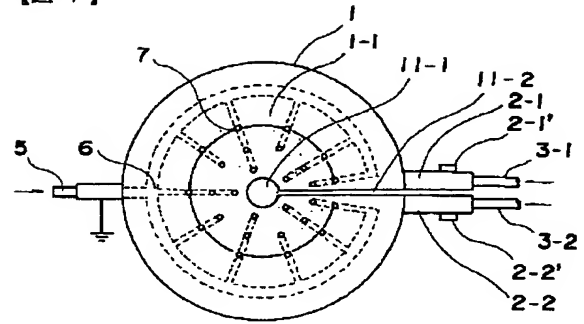
【図13】

【図13】



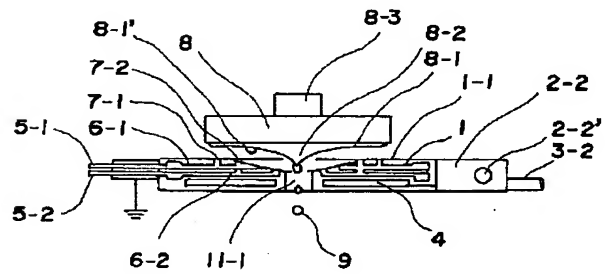
【図4】

【図4】



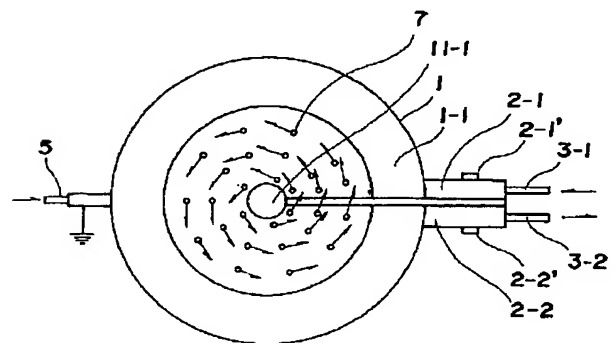
【図6】

【図6】



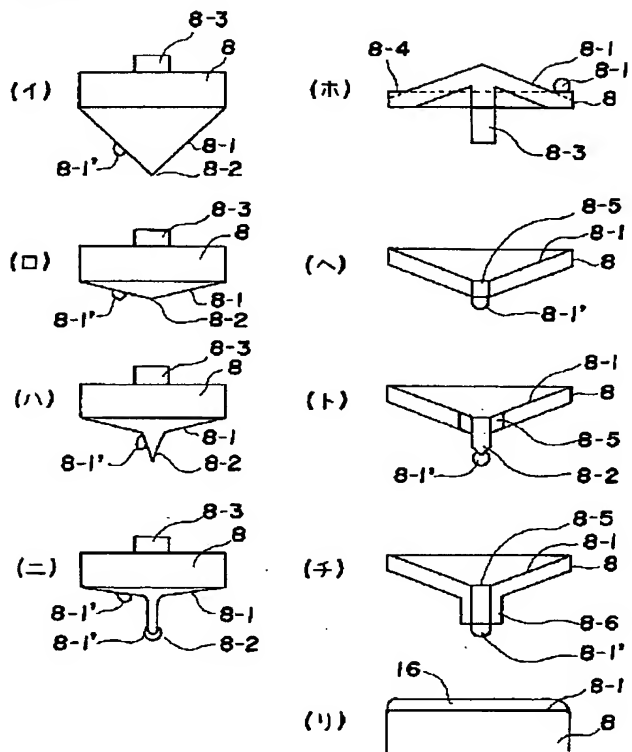
【図8】

【図8】



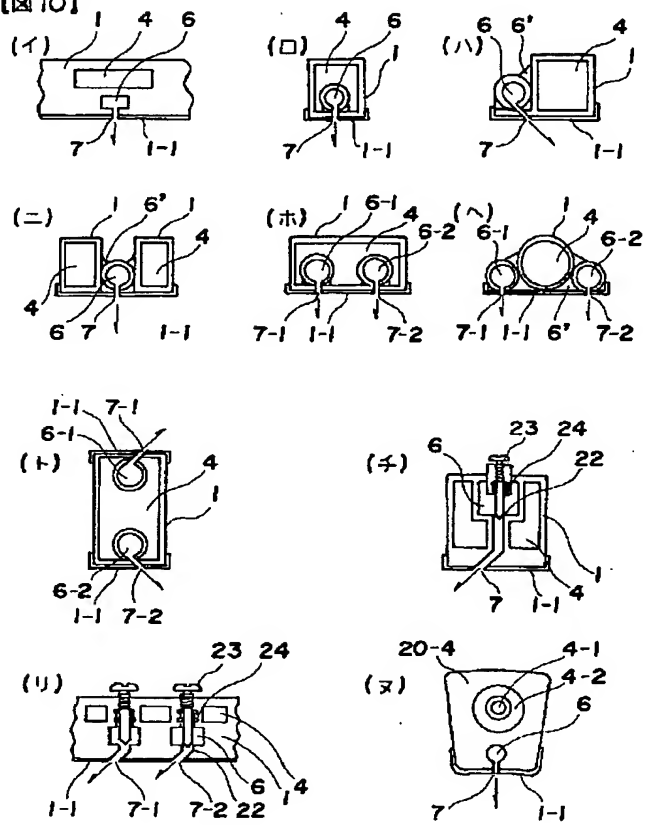
【図9】

【図9】



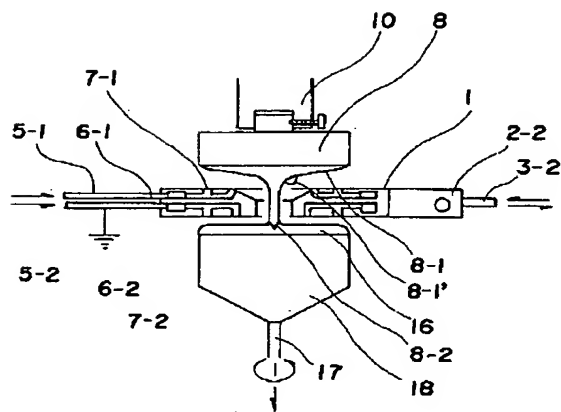
【図10】

【図10】



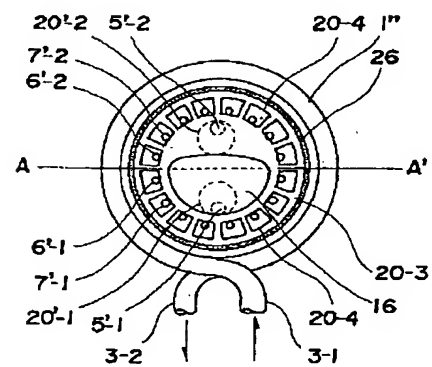
【図19】

【図19】

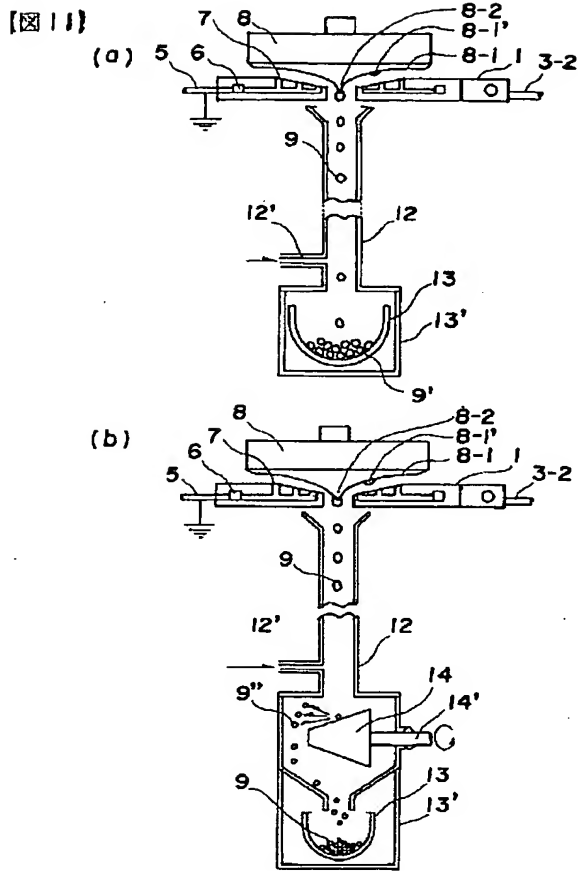


【図24】

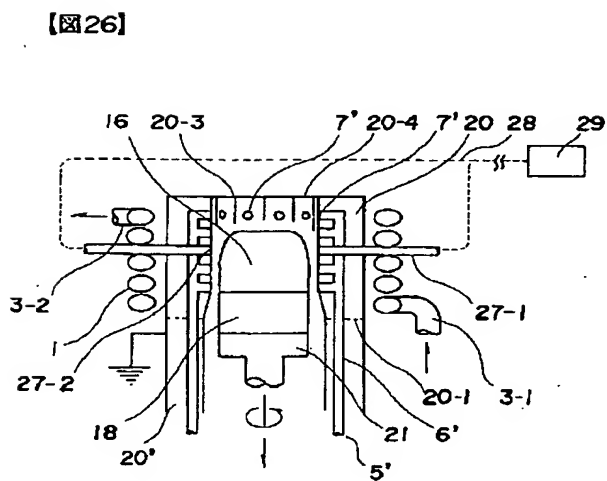
【図24】



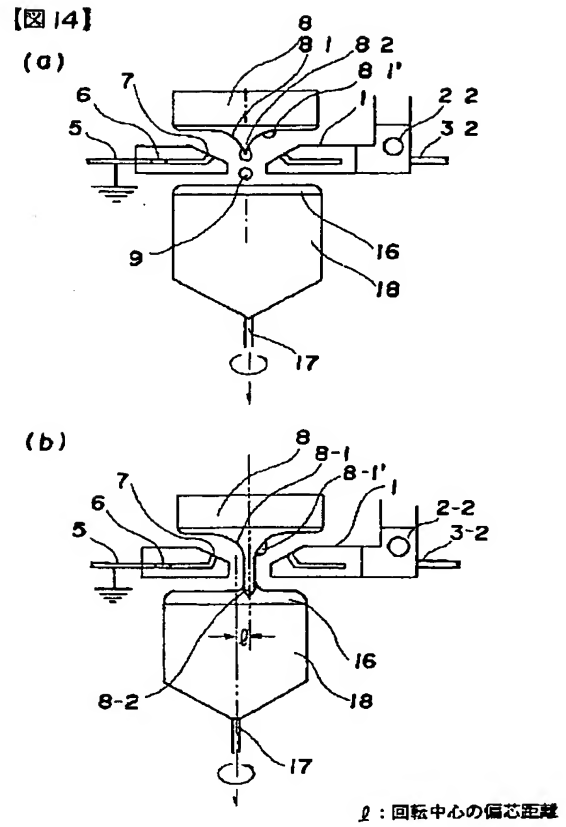
【図11】



【図26】

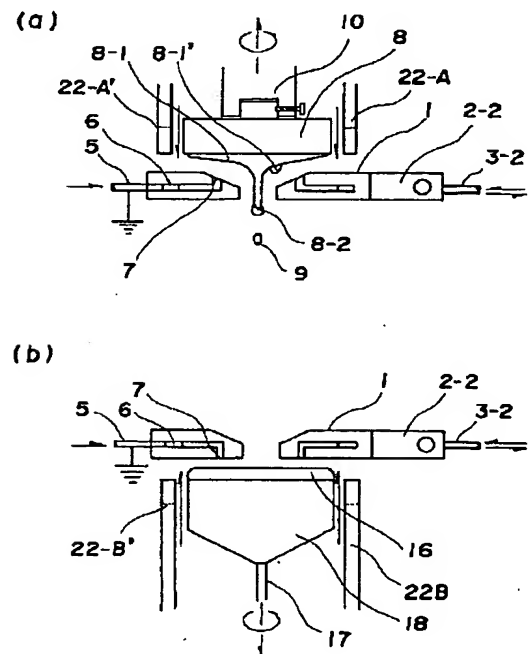


【図14】



【図27】

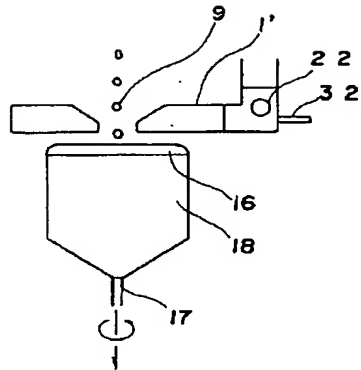
【図27】



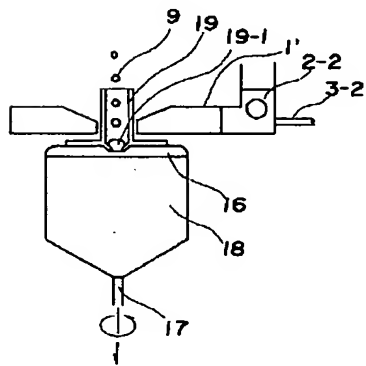
【図15】

【図15】

(a)



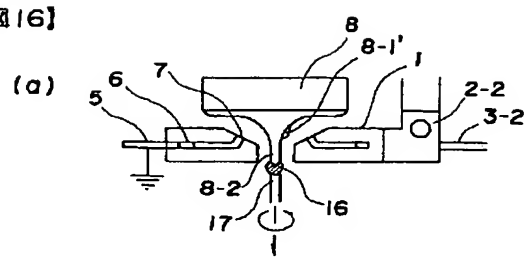
(b)



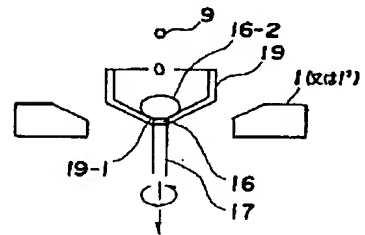
【図16】

【図16】

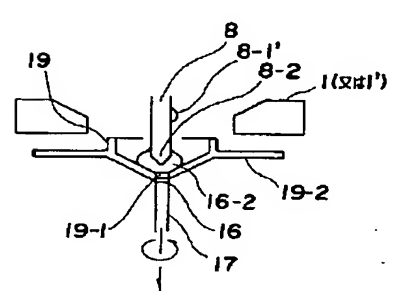
(a)



(b)

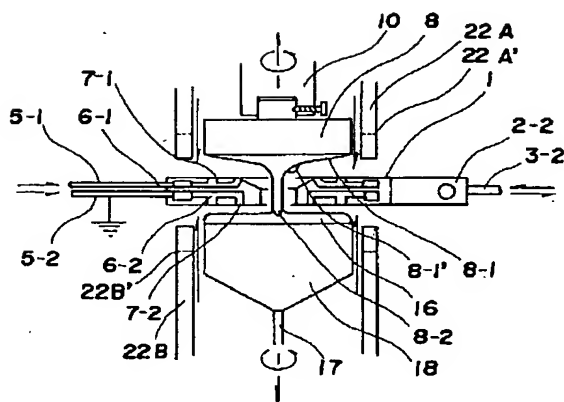


(c)

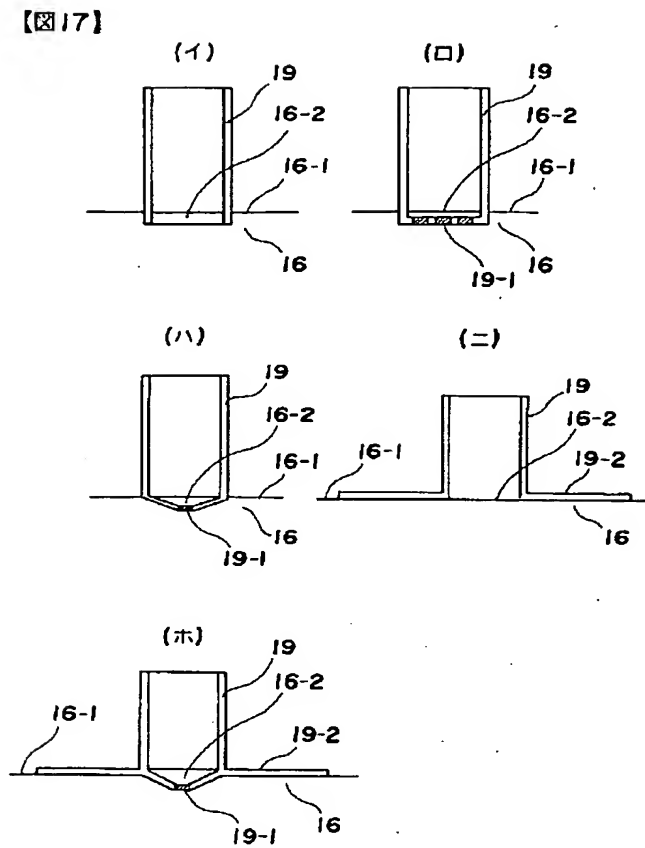


【図28】

【図28】



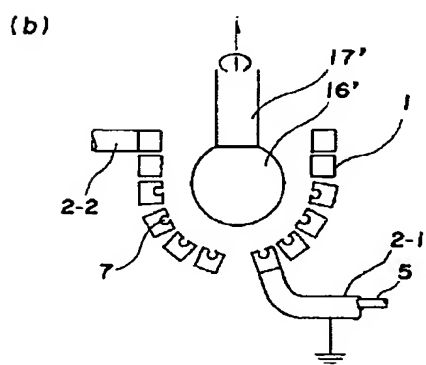
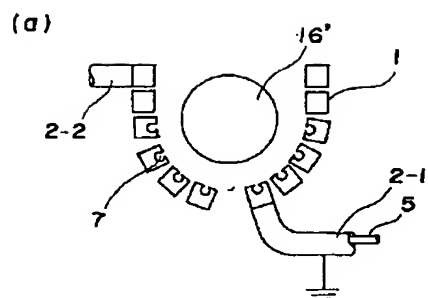
【図 17】





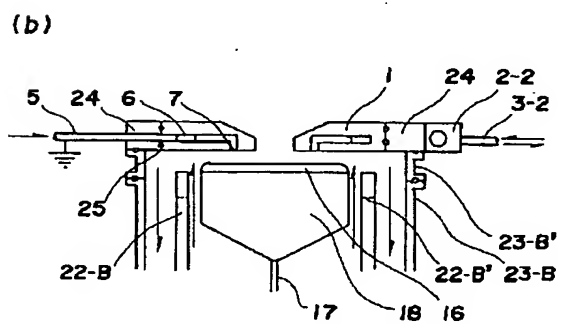
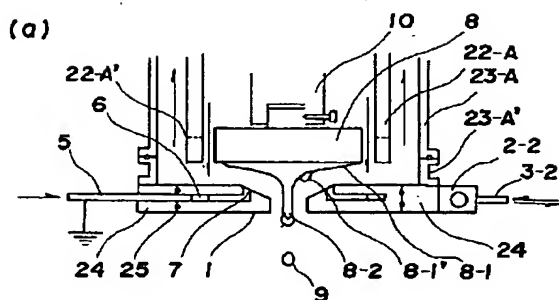
【図20】

【図20】



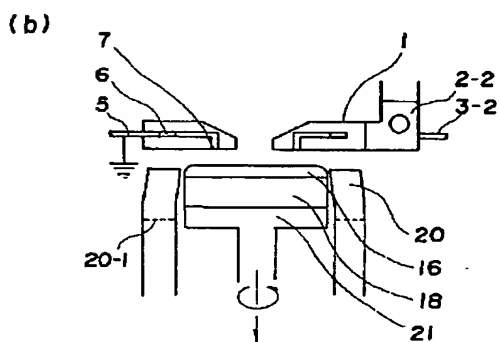
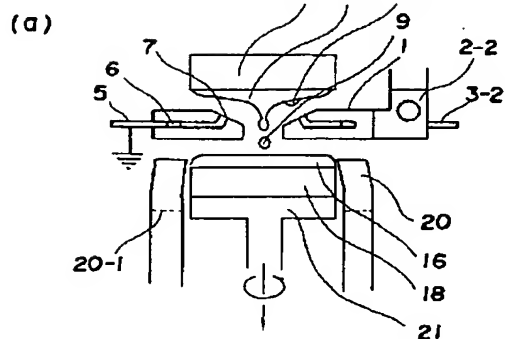
【図29】

【図29】



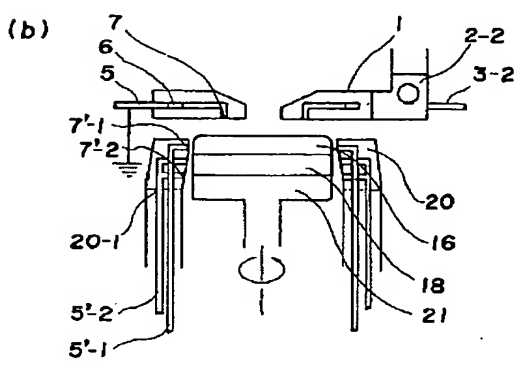
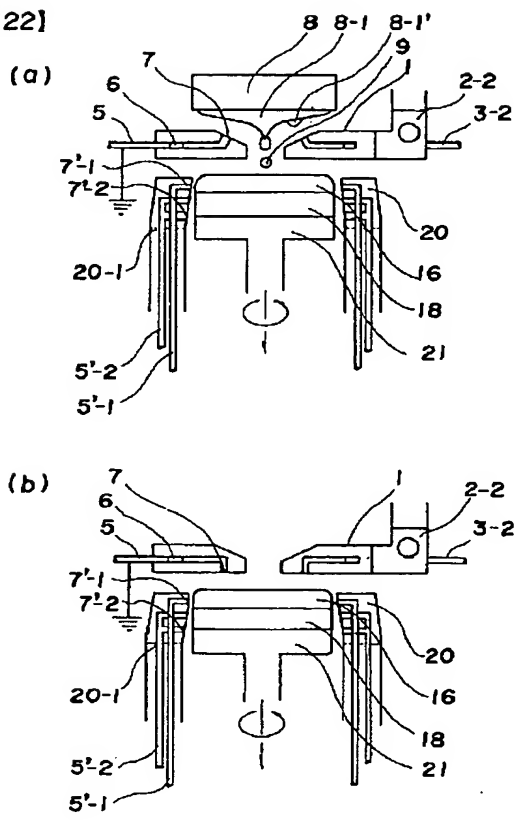
【図21】

【図21】



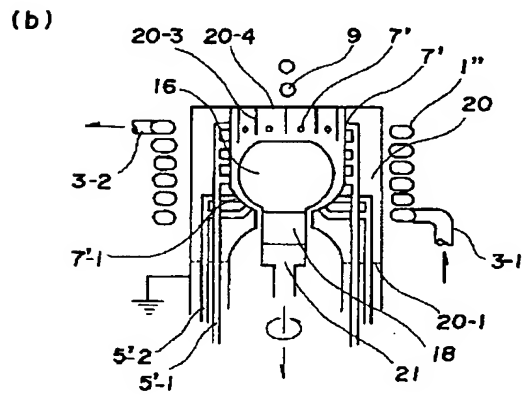
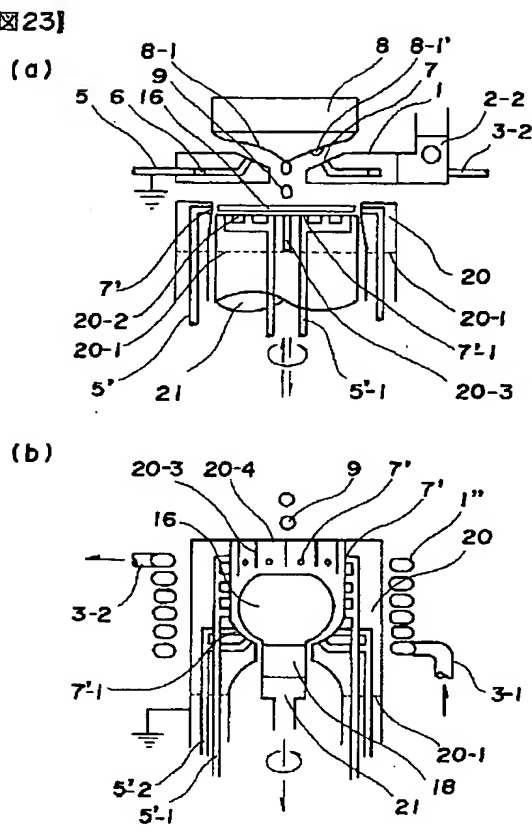
【図22】

【図22】



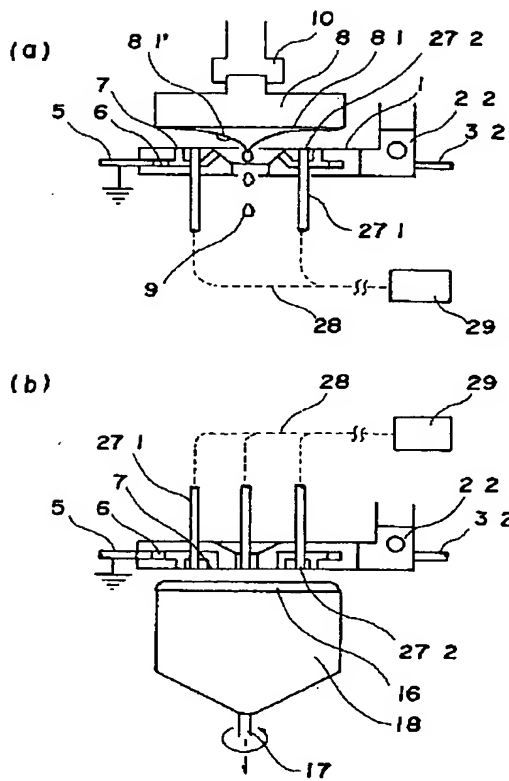
【図23】

【図23】



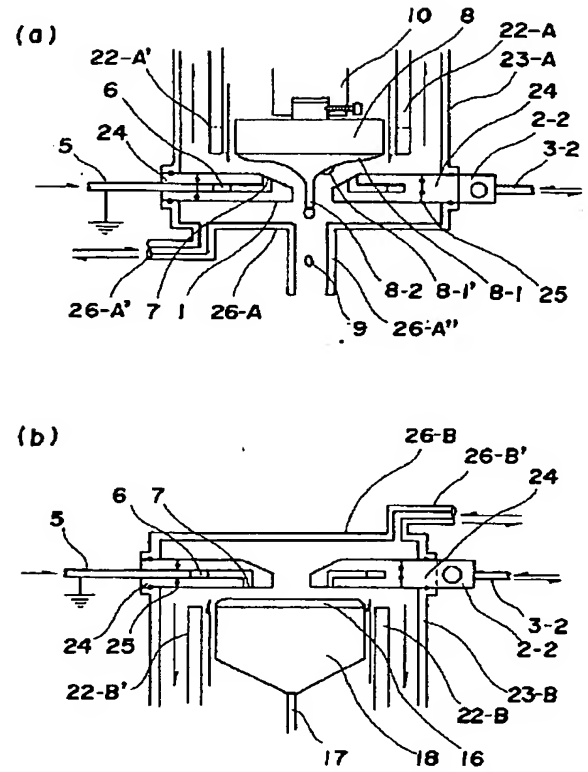
【図25】

【図25】



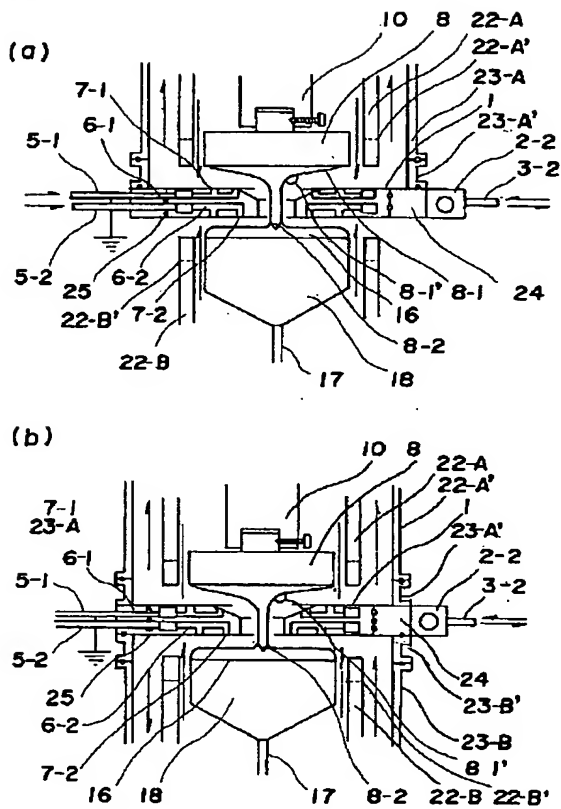
【図30】

【図30】



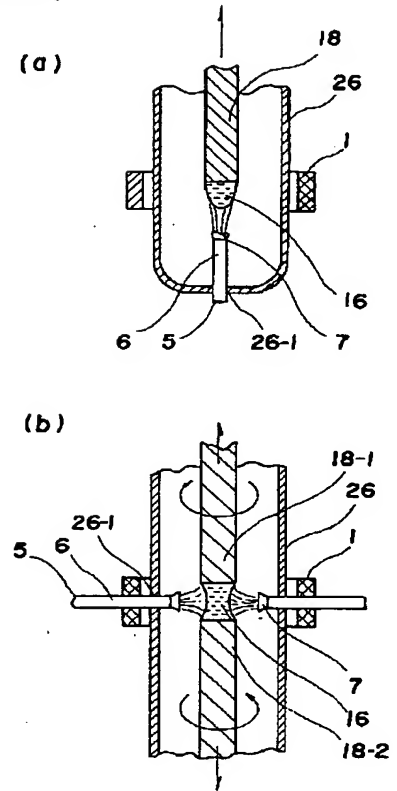
【図31】

【図31】



【図32】

【図32】



【手続補正書】

【提出日】平成10年10月2日

【手続補正1】

【補正対象書類名】図面

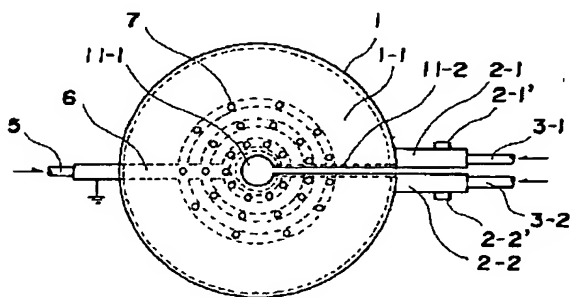
【補正対象項目名】図2

【補正方法】変更

【補正内容】

【図2】

【図2】



【手続補正2】

【補正対象書類名】図面

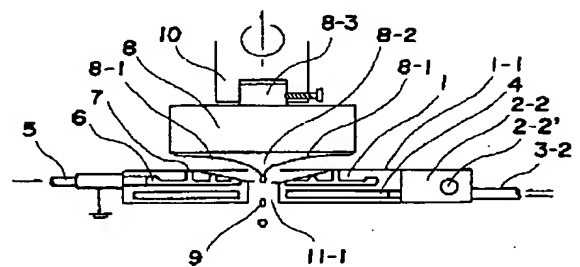
【補正対象項目名】図3

【補正方法】変更

【補正内容】

【図3】

【図3】



【手続補正3】

【補正対象書類名】図面

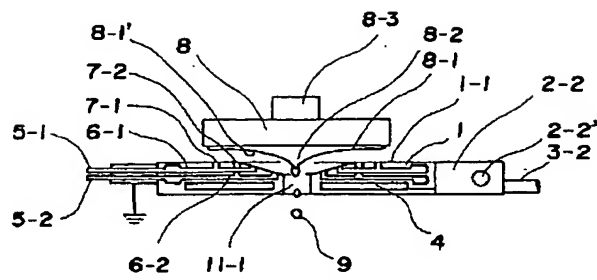
【補正対象項目名】図6

【補正方法】変更

【補正内容】

【図6】

【図 6】



【手続補正 4】

【補正対象書類名】図面

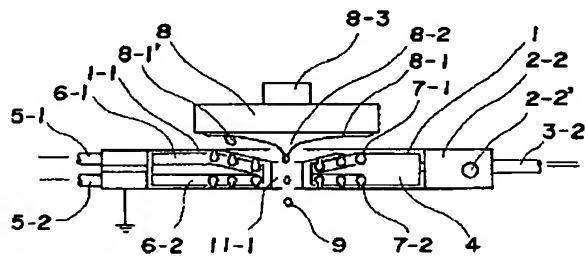
【補正対象項目名】図 7

【補正方法】変更

【補正内容】

【図 7】

【図 7】



【手続補正 5】

【補正対象書類名】図面

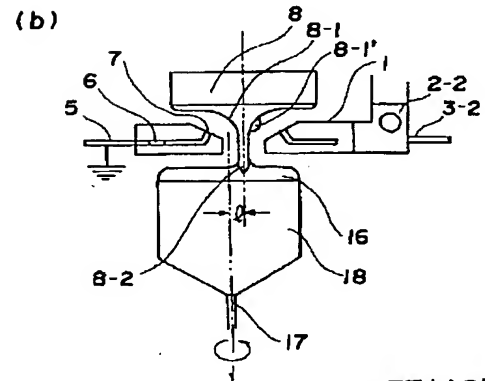
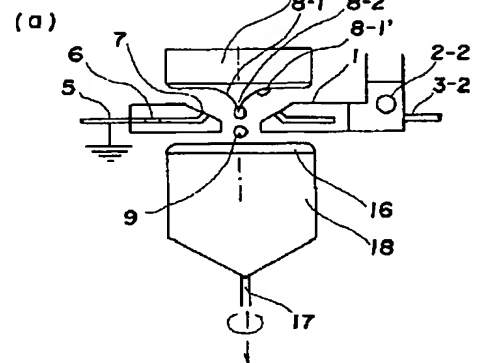
【補正対象項目名】図 1 4

【補正方法】変更

【補正内容】

【図 1 4】

【図 14】



l: 回転中心の偏芯距離

【手続補正 6】

【補正対象書類名】図面

【補正対象項目名】図 1 5

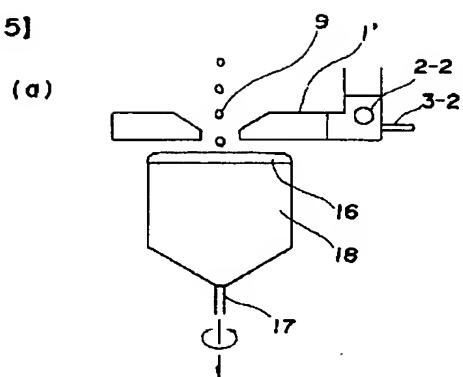
【補正方法】変更

【補正内容】

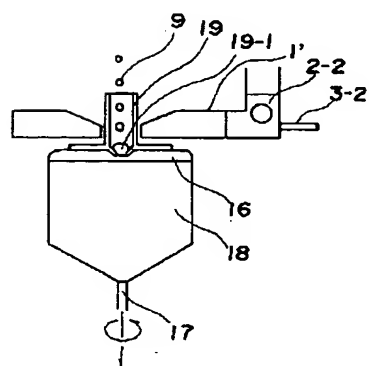
【図 1 5】



【図15】



(b)



【手続補正7】

【補正対象書類名】図面

【補正対象項目名】図21

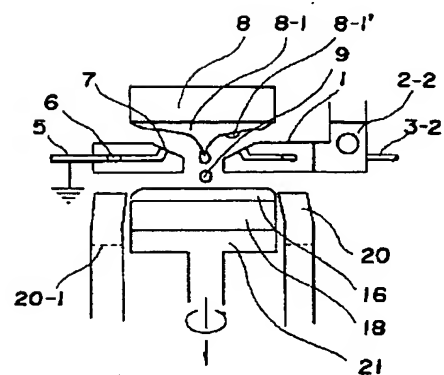
【補正方法】変更

【補正内容】

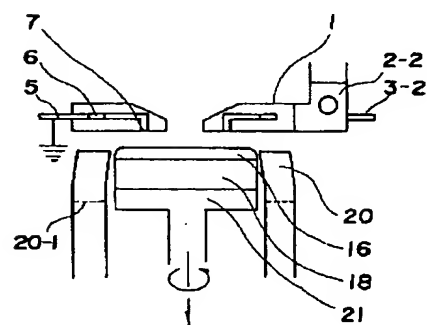
【図21】

【図21】

(a)



(b)



【手続補正8】

【補正対象書類名】図面

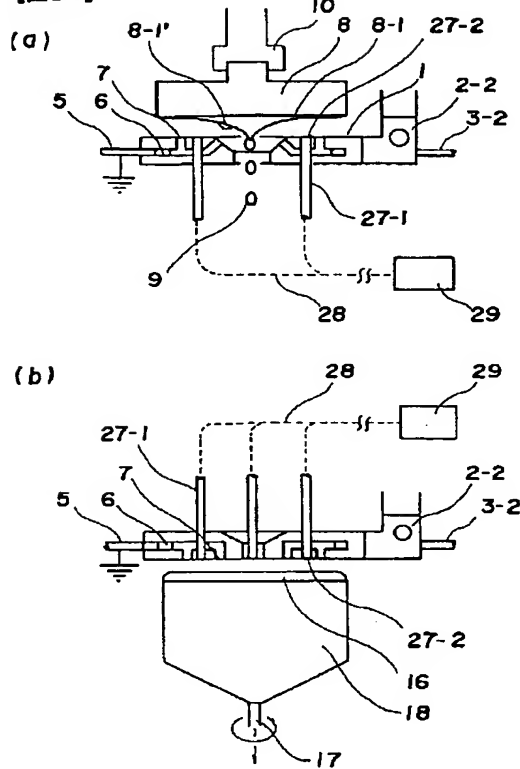
【補正対象項目名】図25

【補正方法】変更

【補正内容】

【図25】

【図25】



【手続補正 9】

【補正対象書類名】図面

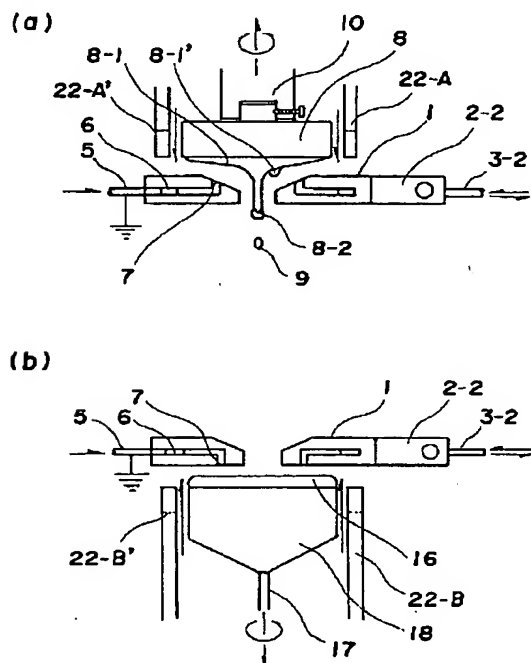
【補正対象項目名】図 2 7

【補正方法】変更

【補正内容】

【図 2 7】

【図27】



【手続補正 1 0】

【補正対象書類名】図面

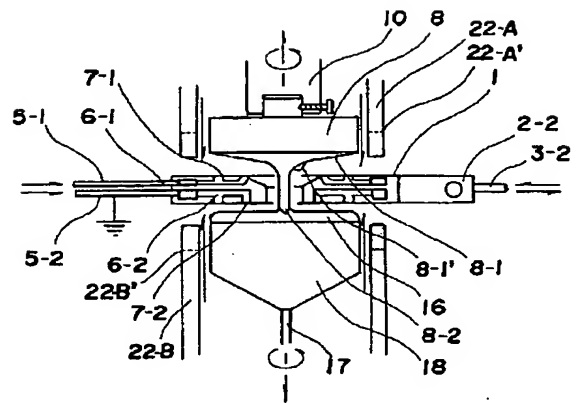
【補正対象項目名】図 2 8

【補正方法】変更

【補正内容】

【図 2 8】

【図28】



【手続補正 1 1】

【補正対象書類名】図面

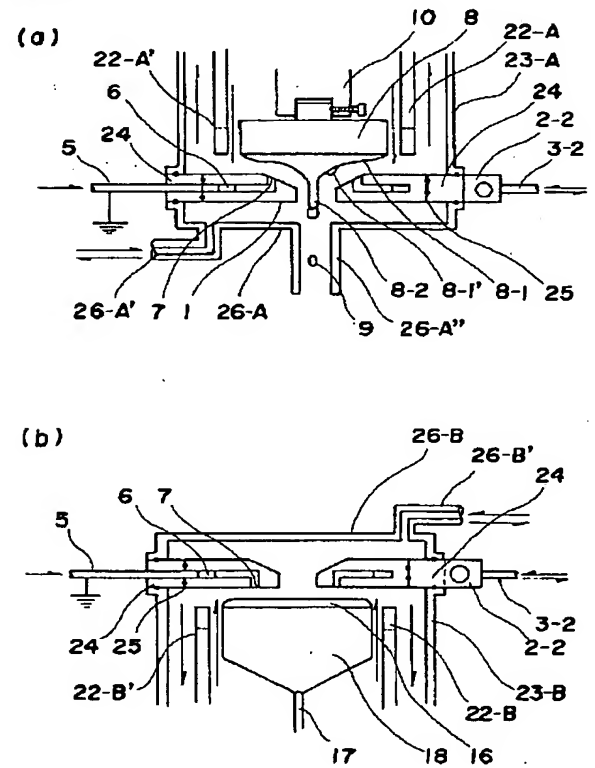
【補正対象項目名】図 3 0

【補正方法】変更

【補正内容】

【図 3 0】

【図30】



フロントページの続き

(51) Int. Cl. <sup>6</sup>

C 3 0 B 13/28  
13/32

識別記号

F I

C 3 0 B 13/28  
13/32